LE JOURNAL DE PHYSIQUE
ET
LE RADIUM

EXPLOITATION DE RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX BRUTS DONNÉS PAR LA MÉTHODE DES COÏNCIDENCES DIFFÉRÉES

Par R. BALLINI et A. BERTHELOT.
Commissariat à l'Énergie atomique.
Service de Physique Nucléaire.

Sommaire. — Les calculs ci-dessous permettent d'obtenir, à partir des résultats donnés par un appareil à coïncidences différées, la répartition des durées de vie de noyaux de période courte créés au hasard au cours du temps.

Il y est tenu compte des taux de comptage et des temps morts des détecteurs, ainsi que du temps mort du dispositif d'enregistrement des coïncidences.

Les seules hypothèses faites sont les suivantes :

1° L'impulsion d'un détecteur se produit sans retard par rapport à l'émission de la particule détectée;

2° L'appareil possède un temps mort θ tel que, entre les naissances de noyaux instables dont la durée de vie est effectivement enregistrée, il existe un intervalle de temps au moins égal à θ, (ce temps mort étant non cumulatif).

Ces calculs sont facilement applicables à différents types d'appareils.

1. **Introduction.** — Lorsque l'on veut mesurer la vie moyenne d'une espèce nucléaire par la méthode des coïncidences différées, on réalise un grand nombre de fois l'opération suivante : réalisation de deux signaux électroniques synchrones avec la naissance et avec la mort de l'un des noyaux étudiés, chronométrage du deuxième signal par rapport au premier (dont l'instant est pris pour origine des temps).

Par exemple, le signal « naissance » peut déclencher le balayage horizontal (connu en fonction du temps) d'un oscillographe cathodique, le signal « mort » étant appliqué aux plaques de déviation verticale (*cf.* notamment Rowlands, 1947 et 1948 (2), English, 1947).

Dans ce cas, il y a « coïncidence différée spécifique » entre le déclenchement du balayage et l'impulsion appliquée entre les plaques de déviation verticale.

Mais il peut également se produire des coïncidences fortuites, correspondant au cas où il n'existe pas de lien de cause à effet entre les deux impulsions appliquées à l'oscillographe.

Rien ne permettant de distinguer l'enregistrement d'une coïncidence spécifique de celui d'une coïncidence fortuite, il est important de savoir calculer le nombre de ces dernières pour une mesure effectuée dans des conditions expérimentales données.

Les calculs ci-dessous, effectués dans ce but, ne sont applicables en toute rigueur qu'au cas où la distribution en temps étudiée est exponentielle : c'est le cas de la durée de vie d'une espèce nucléaire déterminée, qui a une probabilité $\lambda e^{-\lambda t}\,\mathrm{d}t$ d'être comprise entre t et $t + \mathrm{d}t$. Ces calculs ne sont pas applicables à des cas plus complexes, par exemple celui d'impulsions dues aux naissances et aux morts de noyaux appartenant à deux espèces en filiation.

De plus, ces calculs ont été effectués dans le cas où les naissances et les morts d'états nucléaires de vie courte sont distribuées au hasard; ils ne s'appliquent donc pas au cas (d'ailleurs plus simple) où les naissances sont rendues périodiques, par exemple lorsque les noyaux étudiés sont formés dans une réaction nucléaire, sous l'effet d'un jet périodique de projectiles sur une cible.

Remarque. — Un article de Rowlands [1948 (1)] contient un exposé succinct des diverses méthodes de périodes courtes, dont la méthode des coïncidences différées.

2. **Quelques définitions.** — L'exemple de l'oscillographe déclenché permet de préciser des définitions qui nous seront utiles par la suite. Toute impulsion appliquée en un certain point peut déclencher le balayage : même si elles ne sont pas dues à la formation d'un noyau instable, nous appellerons *impulsions* A toutes celles qui sont appliquées en ce point. De même, une impulsion appliquée entre les plaques de déviation verticale peut ne pas être due à la mort d'un noyau, dont la naissance a déclenché le balayage : nous appellerons *impulsions* B toutes celles qui sont appliquées entre les plaques de déviation verticale et sont donc « chronométrables », quelle que soit leur origine.

En outre, il est utile de donner dès maintenant la définition de symboles qui seront employés ultérieurement : les nombres d'évènements désignés par des lettres majuscules correspondent à la durée totale d'une certaine mesure, les lettres minuscules désignant des nombres par unité de temps (nombres supposés constants au cours du temps) :

n_0, nombre de noyaux instables, de l'espèce étudiée, créés par unité de temps (ou disparaissant par unité de temps) [1];

n_A, taux de comptage *total* du détecteur A (de temps mort supposé négligeable), destiné à la détection des naissances de noyaux instables, mais pouvant être sensible à d'autres causes;

n_B, taux de comptage *total* du détecteur B (de temps mort supposé négligeable), destiné à la détection des morts de noyaux instables de l'espèce étudiée, mais pouvant être sensible à d'autres causes;

k_A, probabilité qu'a une naissance de noyau instable d'être enregistrée par le détecteur A;

k_B, probabilité qu'a une mort de noyau instable d'être enregistrée par le détecteur B;

$f_A = n_A - k_A n_0$;

$f_B = n_B - k_B n_0$; « taux de comptage parasite » des détecteurs A et B;

t, temps compté à partir de l'instant d'un déclenchement du chronomètre, pris comme instant zéro;

λ, constante radioactive des noyaux instables de l'espèce étudiée;

$c(t)\,dt$, coïncidences différées enregistrées, le nombre de fronts d'impulsions B dont le délai par rapport au déclenchement de chronomètre immédiatement précédent étant compris entre t et $t + dt$;

n_D, nombre de déclenchements de chronomètre par unité de temps

$$q(t)\,dt = \frac{c(t)}{n_D}\,dt$$

θ, intervalle de temps minimum entre deux déclenchements consécutifs du chronomètre. *Nous nous limitons au cas d'un temps mort non cumulatif* : une impulsion A produite pendant un temps mort ne le prolonge pas et ne peut déclencher le chronomètre (*exemple* : balayage d'un oscillographe déclenché).

N_0, N_A, N_B, N_D, $C(t)$ sont proportionnels à n_0, n_A n_B, n_D, $c(t)$, et sont relatifs à la durée d'une mesure au lieu de l'être à l'unité de temps.

3. **Examen d'un cas simple.** — Afin d'alléger l'exposé, nous ferons provisoirement les quatre hypothèses énoncées ci-dessous. Elles seront (sauf la première) remises en cause par la suite.

a. Les instants de formation et de mort des noyaux étudiés sont repérés avec une précision illimitée (détecteurs sans retards);

b. Les détecteurs A et B n'ont pas de bruit de fond. De plus, A ne peut détecter que la naissance d'un des noyaux étudiés et son rendement est 100 pour 100. Il en est de même pour B vis-à-vis de la mort de ces noyaux.

c. Les impulsions A et B sont rares : l'écart moyen entre deux impulsions A (ou B) consécutives est très grand par rapport à la vie moyenne des noyaux étudiés et par rapport au temps mort du chronomètre. L'impulsion B qui suit immédiatement la naissance d'un noyau a une probabilité beaucoup plus forte d'être due à la mort *de ce même noyau* que d'être due à tout autre phénomène.

d. Les détecteurs, ainsi que le dispositif d'enregistrement des coïncidences, ont un *temps mort négligeable.* De plus, les détecteurs ne donnent qu'une impulsion par particule (pas de « coups multiples »).

Dans le cadre de ces hypothèses, il y a une probabilité

$$q(t)\,dt = \lambda\, e^{-\lambda t}\,dt$$

pour que le front d'une impulsion B se produise entre les instants t et $t + dt$ suivant un déclenchement du signal-chronomètre, choisi pour instant zéro.

Toutes les coïncidences différées enregistrables (au nombre de n_0 par unité de temps) sont alors spécifiques des noyaux de vie courte étudiés. Les taux de comptage n_A et n_B sont tous deux égaux à n_0.

4. **Utilisation de détecteurs non spécifiques et de rendement différent de 1.** — Les hypothèses précédentes étant rarement toutes justifiées, nous allons, dans ce qui suit, calculer $q(t)\,dt$ en

[1] Il ne s'agit évidemment que des noyaux qui remplissent les deux conditions suivantes :

a. Leur naissance est *a priori* susceptible d'être enregistrée par le détecteur connecté à l'entrée A du sélecteur (détecteur A), aucune disposition géométrique (source trop épaisse, écrans, etc.) ne pouvant *systématiquement* l'empêcher.

b. Leur mort est, de même, susceptible *a priori* d'être enregistrée par le détecteur B.

renonçant successivement à l'hypothèse *b*, puis aux hypothèses *b* et *c*, puis aux hypothèses *b*, *c* et *d*.

Tenons donc compte, tout d'abord, du rendement avec lequel les détecteurs enregistrent les naissances et les morts des états nucléaires étudiés.

Dans les rendements k_A et k_B définis ci-dessus interviennent l'angle solide sous lequel le détecteur est vu depuis la source, l'épaisseur de matière traversée par les particules pour parvenir au détecteur, la nature (électrons, photons, etc.) du rayonnement émis lors de la naissance (ou de la mort) d'un noyau. Soit, d'autre part, n_0 le nombre de noyaux de vie courte nés (ou morts) dans la source par unité de temps. On peut toujours se ramener au cas où n_0 est constant au cours du temps : supposons donc que ce cas se trouve réalisé.

De plus, nous admettrons ici que les détecteur A (et B) peuvent compter autre chose que, respectivement, les naissances (et les morts) de ces n_0 noyaux. Les taux de comptage n_A et n_B de ces deux détecteurs par unité de temps peuvent ainsi être respectivement supérieurs à $k_A n_0$ et $k_B n_0$.

Le nombre, par unité de temps, de « paires » d'impulsions AB associées (naissance et mort d'un même noyau) est

$$n_{AB} = k_A \, k_B \, n_0.$$

Si l'hypothèse *c* est toujours justifiée (taux de comptage n_A et n_B faible), il y a, en première approximation, deux sortes de déclenchements du « chronomètre » :

$k_A k_B n_0$ par seconde, provoqués par la naissance d'un noyau instable, et suivis d'un signal B repérant effectivement la mort de ce même noyau : il y a alors *coïncidence spécifique* entre la mort de ce noyau et une certaine phase du fonctionnement du chronomètre.

$n_A - k_A \, k_B \, n_0$ (si n_A est le taux de comptage total du détecteur A), provoqués par un phénomène quelconque ou par une naissance de noyau instable dont la mort est « manquée » par le détecteur B : ces déclenchements se produisent « à blanc » et aucun phénomène n'est repéré par rapport à eux.

Nous avons alors, les taux de comptage étant faibles,

$$q(t) \, \mathrm{d}t = \frac{k_A \, k_B \, n_0}{n_A} \lambda \, \mathrm{e}^{-\lambda t} \, \mathrm{d}t = p_0 \, \lambda \, \mathrm{e}^{-\lambda t} \, \mathrm{d}t,$$

p_0 est la probabilité pour qu'un déclenchement du signal-chronomètre corresponde à la naissance d'un noyau de vie courte dont la mort donnera effectivement lieu à une impulsion dans le détecteur B, de temps mort supposé négligeable.

5. **Intervention des coïncidences fortuites (les détecteurs et le dispositif d'enregistrement des coïncidences ayant des temps morts négligeables).** — 5.1. Supposons maintenant que les hypothèses *a* et *d* restent seules admises parmi celles proposées dans 3. Nous continuons ainsi à admettre que les détecteurs ont un temps mort négligeable et qu'ils produisent une impulsion sans retard appréciable par rapport au phénomène détecté. Mais, en plus des réserves faites dans 4 sur le rendement et sur la non-spécificité des détecteurs, nous tenons compte maintenant du fait suivant : les taux de comptage sont suffisamment élevés pour que la vie de chacun des noyaux étudiés ne soit pas isolée, dans le temps, d'autres phénomènes détectables. C'est ainsi que le chronomètre, déclenché par la formation d'un noyau instable, peut repérer fortuitement une impulsion parasite du détecteur B ou une impulsion due à la mort d'un autre noyau instable. D'autre part, le chronomètre peut aussi être déclenché par une impulsion A parasite et repérer fortuitement une impulsion B quelconque.

Nous pouvons encore définir les *coïncidences spécifiques*, correspondant au cas où le chronomètre, déclenché par la formation d'un noyau instable, repère la mort *de ce même noyau* : les autres coïncidences sont dites *coïncidences fortuites*.

Un cas où toutes les coïncidences sont fortuites est celui où les deux détecteurs A et B détectent deux séries de phénomènes indépendantes l'une de l'autre (par exemple, impulsions de deux compteurs sur lesquels agissent, séparément, deux sources distinctes). Si n_B est le taux de comptage, par unité de temps, du détecteur B, il se produira en moyenne $n_B \, \Delta t$ impulsions B entre les instants où le chronomètre indique l' « heure » t et l' « heure » $t + \Delta t$, lors d'une des ses courses. Si n_D déclenchements du chronomètre se produisent par unité de temps, le nombre correspondant de fronts d'impulsions B observés dans la « bande » $|t, t + \Delta t|$ est $n_D \, n_B \, \Delta t$.

La mesure expérimenale de n_D, n_B et $n_D \, n_B \, \Delta t$ permet de déterminer Δt, avec d'autant plus de précision que le nombre total de coïncidences fortuites enregistrées est plus élevé : c'est une méthode d'*étalonnage du chronomètre*.

5.2. On donne, dans ce qui suit, le principe du calcul des coïncidences spécifiques et fortuites dans le cas qui vient d'être défini.

Soit un déclenchement du chronomètre, à un instant que nous choisissons comme zéro. Cherchons la probabilité $q(t) \, \mathrm{d}t$ *pour qu'une impulsion* B *se produise entre les instants* t *et* $t + \mathrm{d}t$, comptés à partir de ce zéro. Cette probabilité est la somme de deux termes :

1° Effet du « taux de comptage parasite » f_B (*cf.* 2), soit $f_B \, \mathrm{d}t$;

2° Mort d'une fraction $k_B \, \lambda \mathrm{d}t$ des ν noyaux instables existant à l'instant t, soit $k_B \, \lambda \nu \mathrm{d}t$.

Pour calculer ν, *on peut classer dans deux groupes les noyaux instables étudiés* :

— Dans l'un, ceux dont la naissance n'a pu être détectée par A pour des causes géométriques : angle solide, écrans, etc. et non à cause de l'instant où elle s'est produite; soit ν_{ext} leur nombre;

— Dans l'autre, ceux dont la naissance est détectée par A si son temps mort est pratiquement nul, que cette détection ait ou non entraîné la mise en route du chronomètre; soit ν_A leur nombre.

Les instants des naissances des noyaux du premier groupe sont répartis au hasard par rapport à une origine des temps quelconque; le nombre moyen de ces noyaux présents à un instant quelconque est

$$\nu_{ext} = (1 - k_A)\frac{n_0}{\lambda}.$$

En ce qui concerne les noyaux du second groupe, il faut remarquer qu'ils se répartissent entre deux catégories :

— ceux dont la naissance a déclenché le chronomètre;

— ceux dont la naissance n'a pas déclenché le chronomètre, parce que l'impulsion A correspondante s'est produite à un instant où ce dernier était déjà en fonctionnement à la suite d'un déclenchement antérieur.

5.3. Calcul de ν_A. — Poursuivons le raisonnement dans où le temps mort θ du chronomètre n'est pas cumulatif.

Le calcul de ν_A, contribution à ν des noyaux du second groupe, peut être effectué selon le principe suivant :

5.3.1. Appelons T_1, T_2, ..., T_i, ..., des valeurs définies des intervalles séparant les durées successives de fonctionnement du chronomètre,

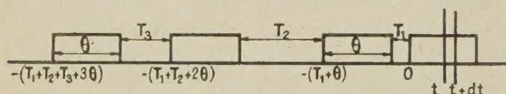


Fig. 1.

qui ont précédé celle dont le début a été choisi pour instant zéro (*fig.* 1). Les déclenchements précédents du chronomètre se sont donc produits aux instants — $(T_1 + \theta)$, — $(T_1 + T_2 + 2\theta)$, ..., — $(T_1 + T_2 + \ldots + T_i + i\theta)$, ... Aucune impulsion A n'a eu lieu au cours des intervalles T, qui sont les durées de sensibilité au déclenchement du chronomètre. Pour chacun des temps morts de durée θ, on calcule le nombre de noyaux du second groupe créés pendant cette durée (y compris celui dont la naissance a éventuellement déclenché le chronomètre) et non détruits à l'instant t. Le résultat ν_i de ce calcul pour le $i^{ème}$ temps mort est une fonction de $T_1 + T_2 + \ldots + T_i$.

5.3.2. A partir de la loi de probabilité relative à la valeur de $T_1 + T_2 + \ldots + T_i$, on calcule la valeur moyenne $\bar{\nu}_i$ du nombre déterminé ci-dessus (nombre de noyaux du second groupe, non détruits à l'instant t, et formés pendant le $i^{ème}$ temps mort précédant l'instant zéro).

5.3.3. On effectue la somme des termes $\bar{\nu}_i$ correspondant aux valeurs de i allant de 1 à ∞.

5.3.4. On ajoute, à cette somme, un terme ν_0 correspondant au déclenchement ayant lieu à l'instant zéro. Ce terme est calculé comme dans l'opération 5.3.1 mais les limites de l'intégration sont 0 et t, au lieu de 0 et θ.

On en déduit enfin

$$\nu_A = \nu_0 + \sum_{i=1}^{\infty} \bar{\nu}_i.$$

Ce calcul, exposé en annexe (5.7) aboutit au résultat suivant pour la participation à ν des noyaux du deuxième groupe

$$\nu_A = \frac{k_A n_0}{\lambda} + \frac{k_A n_0}{n_A} \frac{e^{-\lambda t}}{1 + (1 - e^{-\lambda\theta})\frac{n_A}{\lambda}}.$$

5.4. *La valeur de* ν à introduire dans l'expression

$$q(t)\,dt = f_B\,dt + k_B\lambda\nu\,dt$$

est ainsi

$$\nu = \nu_{ext} + \nu_A = \frac{n_0}{\lambda} + \frac{k_A n_0}{n_A} \frac{e^{-\lambda t}}{1 + (1 - e^{-\lambda\theta})\frac{n_A}{\lambda}}.$$

5.5. $q(t)\,dt = f_B\,dt + k_B\lambda\nu\,dt$ peut donc se mettre sous la forme

5.5.1. $$q(t)\,dt = \lambda p_0\,e^{-\lambda t}\,dt + n_B\,dt,$$

avec

$$p_0 = \frac{k_A k_B n_0}{n_A} \frac{1}{1 + (1 - e^{-\lambda\theta})\frac{n_A}{\lambda}}.$$

Rappelons que $q(t)\,dt$ représente ici la probabilité pour que, entre les instants t et $t + dt$ suivant un déclenchement de chronomètre, le détecteur B (de temps mort supposé négligeable) donne une impulsion.

Le terme en $e^{-\lambda t}$ et le terme non exponentiel ne correspondent pas en toute rigueur aux coïncidences spécifiques et aux coïncidences fortuites. Pour plus de commodité, nous continuerons cependant à désigner par « spécifiques » et « fortuites » les coïncidences représentées par ces deux termes.

5.5.2. Expression approchée des résultats précédents. — Il est à remarquer que, le plus souvent, la vie moyenne des noyaux instables étudiés est beaucoup plus courte que l'intervalle moyen

entre impulsions consécutives du détecteur A, ce qui peut s'exprimer par

$$n_A \ll \lambda.$$

Dans ce cas,

$$p_0 \# \frac{k_A k_B n_0}{n_A}.$$

Rappelons que p_0 est alors la *probabilité pour qu'un déclenchement de chronomètre corresponde à la formation d'un noyau instable, dont la mort sera enregistrée par un détecteur* B *de temps mort négligeable* (*Cf* 4).

5.6. *Le rapport du nombre de coïncidences fortuites au nombre de coïncidences spécifiques* peut être représenté, à un facteur près, par :

$$\frac{n_B}{\lambda p_0} \# \frac{n_A n_B}{k_A k_B n_0 \lambda} = \frac{n_0}{\lambda}\left(1+\frac{f_A}{k_A n_0}\right)\left(1+\frac{f_B}{k_B n_0}\right).$$

Il en ressort que, pour diminuer la proportion des coïncidences fortuites (λ étant imposé), il y a intérêt à :

5.6.1. Diminuer les taux de comptage parasite f_A et f_B, c'est-à-dire utiliser de préférence deux *détecteurs spécifiques* respectivement de la formation et de la mort des noyaux étudiés, et ayant un *bruit de fond faible.*

5.6.2. *Augmenter les rendements* k_A et k_B des détecteurs. Toutefois, si $f_A \# f_B \# 0$, le seul intérêt de l'augmentation des rendements est de diminuer les durées de mesure nécessaires pour obtenir la précision statistique désirée.

5.6.3. *Diminuer* n_0, c'est-à-dire l'intensité absolue de la source. f_A et f_B sont très souvent proportionnels à n_0 : c'est le cas où les détecteurs A et B ont un bruit de fond négligeable, mais où ils enregistrent des rayonnements émis par la source et ne correspondant pas à des formations de noyaux dans l'état instable étudié (pour le détecteur A) et à des morts de ces noyaux (pour le détecteur B). Dans ce cas, on a intérêt à diminuer n_0 le plus possible.

Mais on peut se trouver dans le cas où, en présence d'une source faible, on est amené à tenir compte du bruit de fond φ indépendant de l'intensité de la source. Il est alors évident que, si l'on diminue trop n_0, on finira par enregistrer presque exclusivement des coïncidences fortuites dues à ce bruit de fond.

Si l'on écrit n_A et n_B sous la forme

$$n = K n_0 + \varphi$$

et si l'on étudie la variation de

$$\frac{n_B}{(\lambda p_0)} = \frac{(K_A n_0 + \varphi_A)(K_B n_0 + \varphi_B)}{(k_A k_B n_0 \lambda)}$$

en fonction de n_0, on trouve aisément que pour augmenter le rapport des coïncidences spécifiques aux fortuites, il faut *augmenter* n_0 dans le cas où

$$K_A K_B n_0^2 < \varphi_A \varphi_B,$$

c'est-à-dire

$$\frac{\varphi_A}{n_A} + \frac{\varphi_B}{n_B} > 1$$

et *diminuer* n_0 dans le cas où

$$\frac{\varphi_A}{n_A} + \frac{\varphi_B}{n_B} < 1.$$

5.6.4. Les considérations développées dans 5.6 sont valables, en première approximation, dans les cas exposés ci-après (6).

5.7. Détail du calcul signalé dans 5.3.4. — 5.7.1. *Calcul de* ν_i. — La figure 2 représente le temps mort correspondant au $i^{ème}$ déclenchement du chronomètre ayant précédé l'instant zéro (*fig.* 1).

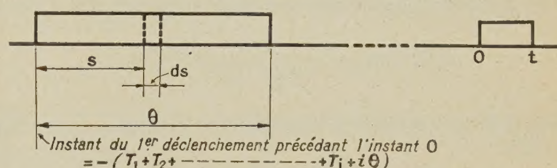


Fig. 2.

Il y a une probabilité $\frac{k_A n_0}{n_A}$ pour que ce déclenchement du chronomètre corresponde à une naissance de noyau instable et, par conséquent, une probabilité

$$\left(\frac{k_A n_0}{n_A}\right)\exp[-\lambda(T_1+T_2+\ldots+T_i+i\theta)]\,e^{-\lambda t}$$

pour qu'il corresponde à la naissance d'un noyau non encore détruit à l'instant t.

D'autre part, il y a une probabilité

$$\exp[-\lambda(T_1+T_2+\ldots+T_i+i\theta)]\,e^{-\lambda t}\,e^{\lambda s}$$

pour qu'un noyau instable, formé entre les instants s et $s+ds$ suivant le $i^{ème}$ déclenchement que nous considérons actuellement (*fig.* 2), subsiste encore à l'instant t. Les noyaux instables (du deuxième groupe cité dans 5.2) étant formés à raison de $k_A n_0$ par unité de temps, on en déduit la contribution à ν_i des noyaux instables éventuellement formés pendant le temps mort θ du chronomètre

$$k_A n_0 \exp[-\lambda(T_1+T_2+\ldots+T_i+i\theta)]\,e^{-\lambda t}\int_0^\theta e^{\lambda s}\,ds$$

$$=\left(\frac{k_A n_0}{\lambda}\right)(e^{\lambda\theta}-1)\exp[-\lambda(T_1+T_2+\ldots+T_i+i\theta]\,e^{-\lambda t}.$$

Il suffit d'ajouter à ce résultat le terme correspondant au noyau instable éventuellement formé lors du $i^{ème}$ déclenchement.

On obtient ainsi :

$$\nu_i = \left[\frac{k_A n_0}{n_A} + \frac{k_A n_0(e^{\lambda\theta} - 1)}{\lambda}\right] \times \exp[-\lambda(T_1 + T_2 + \ldots + T_i + i\theta)]\, e^{-\lambda t}.$$

5.7.2. Le calcul de la valeur moyenne $\overline{\nu_i}$ de ν_i se ramène à celui de la valeur moyenne de : $\exp[-\lambda(T_1 + T_2 + \ldots + T_i)]$ pour toutes les valeurs possibles de $T_1 + T_2 + \ldots + T_i$.

Les évènements susceptibles de déclencher le chronomètre se produisant à raison de n_A par seconde, on peut calculer la probabilité $p_i(T)\,dT$ pour que $T_1 + T_2 + \ldots + T_i$ soit compris entre T et $T + dT$ en partant des bases suivantes :

a. Il y a une probabilité $e^{-n_A s}$ pour que la première impulsion A produite, à partir d'une origine des temps donnée, soit postérieure à l'instant s;

b. $p_i(T)\,dT$ est la différentielle de $P_i(T)$, probilité pour que $T_1 + \ldots + T_i > T$.

On parvient ainsi au résultat suivant :

$$p_i(T)\,dT = n_A^i \frac{T^{i-1}}{(i-1)!} e^{-n_A T}\, dt.$$

La valeur moyenne de $\exp[-\lambda(T_1+T_2+\ldots+T_i)]$ est donc

$$\frac{n_A}{(i-1)!} \int_0^\infty T^{i-1} e^{-n_A T} e^{-\lambda T}\, dT.$$

Un calcul par récurrence, mettant en œuvre des intégrations par parties, conduit pour cette valeur au résultat suivant :

$$\left(\frac{n_A}{n_A + \lambda}\right)^i.$$

Par conséquent,

$$\overline{\nu_i} = \left[\frac{k_A n_0}{n_A} + \frac{k_A n_0(e^{\lambda\theta} - 1)}{\lambda}\right] \left(\frac{n_A}{n_A + \lambda}\right)^i e^{-i\lambda\theta} e^{-\lambda t}$$
$$= \frac{k_A n_0}{n_A}\left[1 + (e^{\lambda\theta} - 1)\frac{n_A}{\lambda}\right]\left[\frac{n_A e^{-\lambda\theta}}{n_A + \lambda}\right]^i e^{-\lambda t}.$$

5.7.3. Le calcul à effectuer est maintenant celui de

$$\sum_{i=1}^{\infty} \overline{\nu_i},$$

ce qui revient à calculer

$$\sum_{i=1}^{\infty} \left(\frac{n_A e^{-\lambda\theta}}{n_A + \lambda}\right)^i = \frac{n_A e^{-\lambda\theta}}{n_A(1 - e^{-\lambda\theta}) + \lambda} = \frac{\left(\frac{n_A}{\lambda}\right) e^{-\lambda\theta}}{1 + (1 - e^{-\lambda\theta})\frac{n_A}{\lambda}}.$$

(en mettant le dénominateur sous la forme $1 + \varepsilon$, où ε est souvent faible par rapport à 1).

On aboutit ainsi à

$$\sum_{i=1}^{\infty} \overline{\nu_i} = \frac{k_A n_0}{n_A} \frac{n_A}{\lambda} \frac{e^{-\lambda\theta} + (1 - e^{-\lambda\theta})\frac{n_A}{\lambda}}{1 + (1 - e^{-\lambda\theta})\frac{n_A}{\lambda}} e^{-\lambda t}.$$

5.7.4. ν_0 se calcule comme ν_i et comprend deux termes : l'un est dû au noyau instable par la naissance duquel le chronomètre est éventuellement déclenché à l'instant 0; l'autre est dû aux noyaux instables éventuellement créés entre l'instant 0 et l'instant t.

$$\nu_0 = \frac{k_A n_0}{n_A} e^{-\lambda t} + \int_0^t k_A n_0 e^{-\lambda(t-s)}\, ds$$
$$= \frac{k_A n_0}{n_A} e^{-\lambda t} + \frac{k_A n_0}{\lambda}(1 - e^{-\lambda t})$$
$$= \frac{k_A n_0}{\lambda} + \left(\frac{k_A n_0}{n_A}\right)\left(1 - \frac{n_A}{\lambda}\right) e^{-\lambda t},$$

$$\nu_A = \nu_0 + \sum_{i=1}^{\infty} \overline{\nu_i}$$

se présente donc sous la forme

$$\nu_A = \frac{k_A n_0}{\lambda} + \left(\frac{k_A n_0}{n_A}\right) K e^{-\lambda t},$$

avec

$$K = 1 - \frac{n_A}{\lambda} + \frac{n_A}{\lambda} \frac{e^{-\lambda\theta} + (1 - e^{-\lambda\theta})\frac{n_A}{\lambda}}{1 + (1 - e^{-\lambda\theta})\frac{n_A}{\lambda}}$$

En effectuant $K\left[1 + (1 - e^{-\lambda\theta})\frac{n_A}{\lambda}\right]$, on trouve aisément 1.

Par conséquent,

$$\nu_A = \frac{k_A n_0}{\lambda} + \left(\frac{k_A n_0}{n_A}\right) \frac{e^{-\lambda t}}{1 + (1 - e^{-\lambda\theta})\frac{n_A}{\lambda}}.$$

expression signalée dans 5.3.4 et qui est l'objet du présent calcul.

5.7.5. *Remarque.* — Il est à noter que, si le rapport $\frac{n_A}{\lambda}$ est suffisamment faible, $\nu_A \neq \frac{k_A n_0}{n_A}$, ce qui correspond au résultat obtenu dans 4.

6. Intervention des temps morts des détecteurs et du dispositif d'enregistrement des coincidences. — 6.1. L'hypothèse *d*, proposée dans 6, concernant les temps morts des détecteurs, n'est généralement pas respectée. Mettons à part le cas du détecteur A, en rappelant seulement que le taux de comptage n_A qui intervient dans les calculs est toujours celui qu'aurait le détecteur A avec un temps mort négligeable; on peut calculer n_A si l'on connaît le temps mort réel de A. Si ce dernier est supérieur à celui du chronomètre θ, il faudra, en outre, dans les calculs, remplacer θ par la valeur du temps mort de A.

6.2. En ce qui concerne les temps morts du détecteur B et du dispositif d'enregistrement des coïn-

cidences, nous nous intéresserons seulement à deux cas qui ont un grand intérêt pratique :

6.2.1. Celui où le détecteur B a un temps mort non cumulatif θ_B supérieur à θ :

6.2.2. Celui où le détecteur B a un temps mort négligeable, mais où l'appareil de détection des coïncidences différées ne peut détecter qu'une seule coïncidence pour un seul déclenchement du chronomètre, celles qui la suivent étant perdues : c'est le cas, par exemple, du dispositif d'enregistrement des coïncidences par photographie d'un tube cathodique décrit par ailleurs (Ballini, *Thèse*).

6.3. Nous allons calculer ci-dessous, dans chacun de ces cas, le nombre de coïncidences différées réellement détectées : pour simplifier, *nous admettrons que* $n_A \ll \lambda$, ce qui est d'ailleurs très souvent réalisé.

La marche suivie pour ce calcul est la suivante : parmi N_D déclenchements de chronomètre pris en considération, on peut distinguer deux groupes.

6.3.1. $N_D p_0$ correspondent à la naissance d'un noyau instable dont la mort participerait effectivement au taux de comptage n_B si le temps mort du détecteur B était négligeable : ces déclenchements peuvent donner lieu à l'enregistrement de coïncidences spécifiques et de coïncidences fortuites.

6.3.2. $N_D(1 - p_0)$ ne correspondent pas à la naissance de tels noyaux et ne peuvent donner lieu qu'à l'enregistrement de coïncidences fortuites.

Rappelons que le sens physiques de $p_0 \neq \frac{k_A k_B n_0}{n_A}$ a déjà été précisé dans 4.

6.4. Nous allons calculer séparément les nombres de coïncidences effectivement enregistrées au cours de ces deux groupes de déclenchements.

6.4.1. Examinons d'abord le cas des $N_D(1 - p_0)$ déclenchements ne pouvant donner lieu qu'à des coïncidences fortuites. Une impulsion B, produite entre les instants t et $t + dt$ suivant un de ces déclenchements, ne donnera lieu à l'enregistrement d'une coïncidence qu'à l'une des conditions suivantes :

Dans le cas 6.2.1 (temps mort θ_B non cumulatif du détecteur B), elle n'est pas produite pendant un temps mort de B : la probabilité pour que cette condition soit réalisée est $\frac{1}{(1+n_B\theta_B)}$.

Dans le cas 6.2.2 (temps mort du dispositif d'enregistrement des coïncidences), l'impulsion B n'a été précédée par aucune autre entre les instants o et t : la probabilité pour que cette condition soit réalisée est $e^{-n_B t}$.

La participation à $C(t)\,dt$ (défini dans 2) de ces $N_D(1 - p_0)$ déclenchements est donc

$$KN_D(1 - p_0)n_B\,dt,$$

avec, suivant le cas,

$$K = \frac{1}{(1 + n_B\theta_B)} \qquad (6.2.1)$$

ou bien

$$K = e^{-n_B t} \qquad (6.2.2).$$

6.4.2. En ce qui concerne les $N_D p_0$ déclenchements susceptibles de donner lieu à l'enregistrement de coïncidences spécifiques, calculons d'abord le nombre de ces dernières. Les conditions pour qu'une impulsion B, produite entre les instants t et $t + dt$, donne lieu à l'enregistrement d'une coïncidence, sont les mêmes que pour le calcul précédent. L'expression $N_D p_0\, \lambda e^{-\lambda t}\,dt$, obtenue à partir de 5.5 doit donc être multipliée par

$$K = \frac{1}{(1 + n_B\theta_B)} \quad \text{ou} \quad e^{-n_B t}$$

suivant le cas, pour obtenir le terme correspondant de $C(t)\,dt$.

6.4.3. Ces $N_D p_0$ déclenchements peuvent aussi donner lieu à l'enregistrement de coïncidences fortuites : mais une telle coïncidence ne peut être enregistrée entre t et $t + dt$ que si *les deux* conditions suivantes sont réalisées :

— Le noyau créé lors du déclenchement (instant o) subsiste encore à l'instant t (probabilité $e^{-\lambda t}$);

— Il n'y a pas eu blocage par une impulsion B antérieure susceptible de donner lieu à l'enregistrement d'une coïncidence fortuite (probabilité K déterminée plus haut).

Le terme correspondant de $C(t)\,dt$ est $N_D p_0\, e^{-\lambda t}\, K n_B\,dt$.

6.4.4. En ajoutant ces différents termes et en divisant par N_D, on obtient la nouvelle forme de

$$q(t)\,dt = \frac{C(t)\,dt}{N_D},$$

$$q(t)\,dt = K\,dt[p_0(\lambda + n_B)\,e^{-\lambda t} + (1 - p_0)n_B],$$

où $K = \frac{1}{(1+n_B\theta_B)}$ si le détecteur B a un temps mort non cumulatif θ_B supérieur à la durée du signal-chronomètre et $K = e^{-n_B t}$ si, θ_B étant négligeable, on utilise un dispositif ne permettant d'enregistrer qu'une coïncidence par déclenchement; p_0 est défini dans 4 et 5.5; n_B est le taux de comptage qu'aurait le détecteur B s'il avait un temps mort négligeable. Dans le cas où le détecteur B a un temps mort θ_B non cumulatif,

$$K(1 - p_0)n_B = (1 - p_0)n'_B,$$

où n'_B est le taux de comptage du détecteur B tel qu'il est observé.

6.5. Intervention des coincidences instantanées. — S'il y a des *coïncidences spécifiques instantanées* (à raison de c_i par unité de temps) entre impulsions B et déclenchements du signal-chronomètre, il faut remplacer n_D par $n_D - c_i$ pour calculer les « fortuites » dans le cas 6.2.1. En effet, les c_i déclenchements en coïncidence instantanée avec une impulsion B sont alors incapables de donner lieu à l'enregistrement de coïncidences différées car, si la coïncidence instantanée n'est pas enregistrée, le détecteur B n'en est pas moins bloqué pendant le temps mort θ_B.

Manuscrit reçu le 13 septembre 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

Ballini R. — *Annales de Physique* (à paraître).

English A. C., Cranshaw T. E., Demers P., Harvey J. A., Hincks E. P., Jelley J. V. et May A. N. — *Phys. Rev.*, 1947, **72**, 253.

Rowlands S. — *Nature*, 1947, **160**, 191; *Nucleonics*, 1948, **3**, 2 (1); *J. Sc. Inst.*, 1948, **25**, 218 (2).

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM. TOME 14, JANVIER 1953, PAGE 8.

ESSAI D'INTERPRÉTATION MOLÉCULAIRE DES CONSTANTES ÉLASTO-OPTIQUES DU CHLORURE DE SODIUM

Par M. P. MARCK et Mlle L. TAUREL.

Centre d'Études cristallographiques. Faculté des Sciences de Nancy.

Sommaire. — Les auteurs calculent la variation de polarisabilité de l'ion Cl^- en fonction des constantes élasto-optiques de Pockels lorsque le chlorure de sodium subit une déformation statique.

Dans une théorie moléculaire de la diffusion Rayleigh par le chlorure de sodium [1], la polarisabilité électronique des ions Na^+ et Cl^- est supposée isotrope, même lorsqu'une onde élastique sillonne le cristal.

Nous nous sommes proposés d'étudier le cas où le cristal subit une déformation statique, afin de vérifier la validité de cette hypothèse et, éventuellement, de la compléter.

On sait [2] que les variations d'indice de réfraction sont alors liées aux déformations du milieu par les constantes élasto-optiques de Pockels. Pour un cristal cubique, de type de symétrie O_h, les termes du tenseur des susceptibilités électriques sont donnés par des expressions approximatives du type

$$k_{xx} = k_0 + [p_{11}x_x + p_{12}y_y + p_{12}z_z]\frac{n^4}{4\pi}, \qquad k_{yz} = p_{44}y_z\frac{n^4}{4\pi};$$

$$k_{yy} = k_0 + [p_{12}x_x + p_{11}y_y + p_{12}z_z]\frac{n^4}{4\pi}, \qquad k_{zx} = p_{44}z_x\frac{n^4}{4\pi};$$

$$k_{zz} = k_0 + [p_{12}x_x + p_{12}y_y + p_{11}z_z]\frac{n^4}{4\pi}, \qquad k_{xy} = p_{44}x_y\frac{n^4}{4\pi};$$

k_0 représente la suceptibilité électrique du cristal non déformé;

les p_{ik} sont les constantes élasto-optiques de Pockels;

n est l'indice du cristal non déformé;

x_x, ..., y_z, ... représentent les déformations du milieu $\left(x_x = \frac{\partial u}{\partial x};\ y_z = \frac{\partial v}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial y};\ u, v, w,\right.$ étant les déplacements du point de coordonnées $\left. x, y, z\right)$.

Pour NaCl [3],

$$p_{11} = 0,1372, \qquad p_{12} = 0,178, \qquad p_{44} = -0,0108,$$
$$n = 1,56 \quad \text{pour la raie } D \text{ du sodium.}$$

La difficulté qui se présente, dans tous les problèmes de ce genre, est de connaître la valeur du champ local (ou champ interne) qui polarise l'ion dans le cristal.

Lorsqu'on suppose, dans un cristal cubique, les ions ponctuels, le champ local **F** est lié au champ électrique **E** et à la polarisation **P** par la formule de Lorentz-Lorenz :

$$\mathbf{F} = \mathbf{E} + \frac{4\pi}{3}\mathbf{P}.$$

Si, au contraire, on admet un « recouvrement » partiel des ions [4], on est conduit à poser

$$\mathbf{F} = \mathbf{E} + \gamma\mathbf{P}.$$

Mott et Gurney trouvent $\gamma = 0{,}06$ à condition de prendre comme polarisabilité des ions Na^+ et Cl^- les polarisabilités de l'ion libre, soit

$$\alpha_1 = 0{,}19.10^{-24}, \qquad \alpha_2 = 3{,}53.10^{-24}.$$

En raison du grand nombre de faits expérimentaux dont rend compte la formule de Lorentz-Lorenz, nous supposerons dans ce qui suit

$$\gamma = \frac{4\pi}{3}.$$

Nous admettrons, par contre, que les polarisabilités α_1 et α_2 ne sont pas les mêmes à l'état libre et dans le cristal; suivant Schockley [5], nous poserons

$$\alpha_1 = 0{,}28.10^{-24}, \qquad \alpha_2 = 2{,}92.10^{-24}.$$

Les facteurs dont dépendent les constantes élasto-optiques sont :

a. La variation de densité ionique au cours de la déformation;

b. La variation de polarisabilité des ions;

c. La variation subie par le facteur γ intervenant dans l'expression du champ local.

Étude de la déformation conservant la symétrie cubique du cristal. — Lorsqu'on impose la déformation

$$x_x = y_y = z_z = \varepsilon, \qquad y_z = z_x = x_y = 0,$$

le cristal demeure cubique. Le facteur γ reste égal à $\frac{4\pi}{3}$

La variation de susceptibilité électrique fournie par les constantes élasto-optiques est donnée par l'expression

$$\Delta k = \frac{n^4}{4\pi}(p_{11} + 2p_{12})\varepsilon = 0{,}23\,\varepsilon. \qquad (1)$$

D'autre part, la constante k est toujours donnée par la formule [4] :

$$k = \frac{N(\alpha_1 + \alpha_2)}{1 - \frac{4\pi}{3}N(\alpha_1 + \alpha_2)};$$

N est le nombre de paires d'ions par centimètre cube, soit $2{,}25.10^{22}$;

α_1 et α_2 sont les polarisabilités des ions Na^+ et Cl^-.

L'ion Na^+ ayant un faible volume et possédant une polarisabilité 10 fois plus faible que l'ion Cl^-, nous admettrons que α_1 ne varie sensiblement pas. Dans cette hypothèse, on trouve

$$\Delta k = -0{,}44\,\varepsilon + 0{,}046.10^{24}\,d\alpha_2. \qquad (2)$$

En égalant (1) et (2), on obtient

$$d\alpha_2 = 14{,}5.10^{-24}\,\varepsilon.$$

Pour tenir compte des déformations qui détruisent la symétrie cubique du système, il convient de lier le moment $d\mathbf{M}_2$ induit dans un ion Cl^- et le champ local $\mathbf{F}$ par la relation tensorielle

$$d\mathbf{M}_2 = [A_2]\mathbf{F}.$$

Les termes de $[A_2]$ doivent s'exprimer en fonction des déformations de la même manière que les susceptibilités électriques. On doit donc avoir

$$[A_2] = \begin{vmatrix} \alpha_{xx} & \alpha_{xy} & \alpha_{xz} \\ \alpha_{yx} & \alpha_{yy} & \alpha_{yz} \\ \alpha_{zx} & \alpha_{zy} & \alpha_{zz} \end{vmatrix},$$

avec

$$\alpha_{xx} = \alpha_2 + a x_x + b y_y + b z_z,$$
$$\alpha_{yy} = \alpha_2 + b x_x + a y_y + b z_z,$$
$$\alpha_{zz} = \alpha_2 + b x_x + b y_y + \alpha z_z,$$
$$\alpha_{yz} = c y_z,$$
$$\alpha_{zx} = c z_x,$$
$$\alpha_{xy} = c x_y.$$

L'étude précédente fournit

$$a + 2b = 14{,}5.10^{-24}.$$

Étude d'une dilatation z_z. — Pour déterminer le champ local dans un cristal cubique, Lorentz utilise le raisonnement suivant [4] :

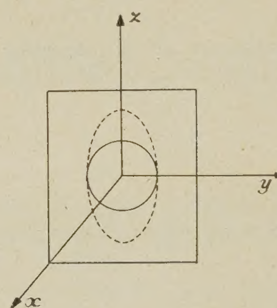


Schéma 1.

Lorsqu'on soumet le cristal à un champ électrique **E**, un ion O est soumis au champ supplémentaire dû à tous les dipôles induits. Séparons ces dipôles en deux parties :

a. Ceux qui sont situés à l'extérieur d'une cavité de rayon R et de centre O. Pour un rayon suffisamment grand, on peut admettre qu'ils ont la même action que le milieu continu qui les contient. Cette action se réduit donc aux charges de polarisation portées par la surface sphérique qui limite la cavité. On montre aisément que le champ résultant est égal à $\frac{4\pi}{3}$ P, P représentant la polarisation du milieu continu.

b. Ceux qui sont situés à l'intérieur de la cavité sphérique. Par symétrie, le champ résultant qu'ils exercent est nul.

Ce raisonnement peut être étendu au cas où le

cristal subit une déformation élastique. Examinons celui où seule z_z est différente de O. La sphère précédente devient un ellipsoïde d'axes

$$a_0 = b_0 = R \qquad C_0 = R(1 + z_z).$$

Pour les polarisations dirigées suivant Ox, Oy, Oz, le coefficient $\frac{4\pi}{3}$ doit être remplacé par L, M, N, tels que

$$L = M = \frac{4\pi}{3}\left(1 + \frac{2}{5} z_z\right), \qquad N = \frac{4\pi}{3}\left(1 - \frac{4}{5} z_z\right)$$

(*voir* Note I).

D'autre part, les dipôles situés à l'intérieur de la cavité n'ont plus une action résultante nulle. Il est nécessaire d'opérer terme à terme pour l'évaluer.

Envisageons tout d'abord le cas où l'on crée un champ E_y parallèle à O_y. — Supposons qu'à l'origine O des coordonnées se trouve un ion Cl^-. En absence de déformation, les coordonnées d'un ion rapporté aux axes du cristal passant par O sont de la forme

$$x = p\frac{\mu}{2}, \qquad y = q\frac{\mu}{2}, \qquad z = r\frac{\mu}{2},$$

$$\delta = \frac{\mu}{2}(p^2 + q^2 + r^2)^{\frac{1}{2}} = \frac{\mu}{2} d$$

(μ étant la longueur de la maille); pour d^2 pair, on a affaire à un ion Cl^-, pour d^2 impair à un ion Na^+.

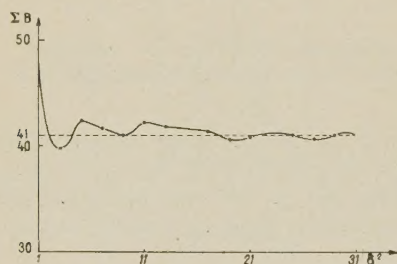


Fig. 1. — Action des ions Na^+ sur un ion Cl^- central. Déformation z_z, champ électrique parallèle Ox ou Oy.

La répartition des ions au voisinage de O est indiquée en détail dans la référence [1], p. 329. Sous l'influence de E_y, les ions Na^+ et Cl^- portent des moments dM_1 et dM_2 dirigés suivant Oy. Chacun d'eux crée au centre un champ

$$H_y = \frac{3y^2 - \delta^2}{\delta^5} dM.$$

L'action résultante de tous les ions situés sur une sphère de rayon δ est nulle par symétrie.

Il est donc normal, lorsqu'on crée une déformation z_z, d'envisager l'action résultante dH_y des ions qui, au repos, se trouvaient sur une sphère de rayon δ. On trouve

$$dH_y = B z_z \frac{dM}{\mu^3},$$

avec

$$B = \frac{8n[p^4 + q^4 + r^4 - 3(p^2q^2 + q^2r^2 + r^2p^2)]}{(p^2 + q^2 + r^2)^{\frac{7}{2}}};$$

n représente le nombre d'ions se trouvant initialement à la distance δ.

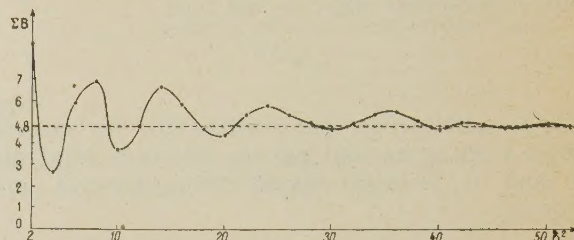


Fig. 2. — Action des ions Cl^- sur un ion Cl^- central. Déformation z_z, champ électrique parallèle à Ox ou Oy.

TABLEAU I.

Action des ions Cl^- *sur un ion* Cl^- *central.*

δ^2.	p.	q.	r.	B.	ΣB.
2..........	1	1	0	—8,46	—8,46
4..........	0	0	2	6	—2,46
6..........	1	1	2	—3,27	—5,73
8..........	2	0	2	—1,06	—6,79
10..........	1	0	3	3,34	—3,46
12..........	2	2	2	—1,03	—4,49
14..........	1	2	3	—1,95	—6,44
16..........	4	0	0	0,75	—5,69
....	.	.	.	......	......
54..........	2	5	5	—0,19	—4,81
54..........	1	2	7	0,55	—4,27
56..........	4	5	5	—0,26	—4,53
56..........	6	4	2	—0,23	—4,73

TABLEAU II.

Action des ions Na^+ *sur un ion* Cl^- *central.*

δ^2.	p.	q.	r.	B.	ΣB.
1..........	1	0	0	48	48
3..........	1	1	1	—8,2	39,8
5..........	2	1	0	3,43	42,43
9..........	2	2	1	—3,42	39,8
9..........	3	0	0	1,17	41
11..........	3	1	1	1,17	42,2
13..........	3	2	0	—0,27	41,9
17..........	3	2	2	—1,46	39,4
17..........	4	1	0	1,98	41,4

Les tableaux et les courbes ci-contre indiquent la somme des quantités B en fonction du rayon R de la cavité initialement sphérique. L'expression ΣB, relative à l'action des ions Cl^- sur l'ion Cl^- central, tend vers une limite égale à — 4,8.

L'existence d'une limite indépendante du rayon R justifie le procédé de calcul utilisé. De même,

l'expression ΣB, relative à l'action des ions Na^+ sur l'ion Cl^- central tend vers 41.

Le champ local F_2 agissant sur l'ion Cl^- central peut donc s'écrire

$$F_2 = E + \frac{4\pi}{3}\left(1 + \frac{2}{5} z_z\right)P - 4,8 z_z \frac{dM_2}{\mu^3} + 41 z_z \frac{dM_1}{\mu^3}. \quad (3)$$

Si l'on sépare la polarisation P en deux fractions P_1 et P_2 dues aux ions Na^+ et Cl^- et si l'on appelle F_1 le champ local agissant sur l'ion Na^+, on a les relations

$$dM_1 = \alpha_1 F_1 = P_1 \frac{\mu^3}{4}(1 + z_z),$$

$$dM_2 = \alpha_{yy} F_2 = P_2 \frac{\mu^3}{4}(1 + z_z).$$

avec

$$\alpha_{yy} = \alpha_2 + b z_z.$$

Lorsqu'on introduit ces expressions en (3), on trouve

$$\frac{P_2\mu^3}{4\alpha_{yy}}(1 + z_z) = E + \frac{4\pi}{3}\left(1 + \frac{2}{5} z_z\right)(P_1 + P_2) - \frac{4,8}{4} z_z P_2 + \frac{41}{4} z_z P_1. \quad (4)$$

On peut refaire la même opération sur un ion Na^+ situé à l'origine des coordonnées. On obtient alors

$$\frac{P_1\mu^3}{4\alpha_1}(1 + z_z) = E + \frac{4\pi}{3}\left(1 + \frac{2}{5} z_z\right)(P_1 + P_2) - \frac{4,8}{4} z_z P_1 + \frac{41}{4} z_z P_2. \quad (5)$$

Les relations (4) et (5) permettent le calcul de P_1 et P_2 en fonction de E. On en déduit la nouvelle susceptibilité. Lorsqu'on fait $\mu = 5,63 \cdot 10^{-8}$ cm, on trouve

$$k_{yy} = \frac{0,071 - 0,0616 z_z + 0,0224 b z_z}{0,697 + 0,238 z_z - 0,089 b z_z}. \quad (6)$$

L'utilisation des constantes élasto-optiques fournit

$$k_{yy} = k_0 + \frac{n^4}{4\pi} p_{12} z_z = 0,115 + 0,084 z_z. \quad (7)$$

En égalant ces deux valeurs, on trouve

$$b = 4,5 \cdot 10^{-24}.$$

Créons maintenant un champ parallèle à Oz. — On constate aisément que les termes B définis précédemment prennent dans ce cas la valeur $-2B$. Les deux équations (4) et (5) deviennent

$$\frac{P_2\mu^3}{4\alpha_{zz}}(1 + z_z) = E + \frac{4\pi}{3}\left(1 - \frac{4}{5} z_z\right)(P_1 + P_2) + \frac{9,6}{4} z_z P_2 - \frac{82}{4} z_z P_1,$$

$$\frac{P_1\mu^3}{4\alpha_1}(1 + z_z) = E + \frac{4\pi}{3}\left(1 - \frac{4}{5} z_z\right)(P_1 + P_2) + \frac{9,6}{4} z_z P_1 - \frac{82}{4} z_z P_2.$$

D'où la valeur de k_{zz}. En écrivant que

$$k_{zz} = k_0 + \frac{n^4}{4\pi} p_{11} z_z,$$

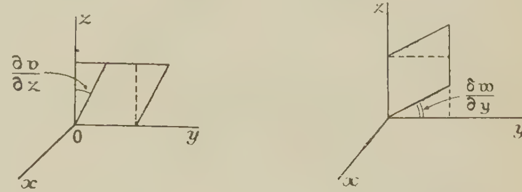
on trouve

$$a = 5,42 \cdot 10^{-24}.$$

On obtient ainsi

$$a + 2b = 14,42 \cdot 10^{-24}$$

en bon accord avec la valeur $14,5 \cdot 10^{-24}$ trouvée dans le cas de la déformation « cubique ».



Schémas 2 et 3. — Schéma des deux déformations dont la superposition conduit à y_z. Schéma 4.

Étude du cisaillement y_z. — Lorsqu'on soumet le cristal, ayant subi la déformation y_z à un champ E_y, il apparaît les polarisations

$$P_y = k_0 E_y,$$

$$P_z = \frac{n^4}{4\pi} p_{44} y_z E_y = \beta y_z E_y,$$

avec

$$\beta = \frac{n^4}{4\pi} p_{44}.$$

Nous suivrons la même méthode que précédemment pour exprimer les champs locaux s'exerçant sur les ions Cl^- et Na^+.

Supposons tout d'abord qu'à l'origine des coordonnées se trouve un ion Cl^- et envisageons une cavité sphérique de rayon R entourant l'origine. Après déformation, cette sphère devient un ellipsoïde d'équation

$$x^2 + y^2 + z^2 - 2(y_z) yz = R^2.$$

Les cosinus directeurs des axes Ox', y', z' de cet ellipsoïde, ainsi que les valeurs des demi-axes correspondants sont indiqués dans le tableau ci-dessous

O.	x.	y.	z.	Longueur du demi-axe.
x'	1	0	0	R
y'	0	$\frac{1}{\sqrt{2}}$	$-\frac{1}{\sqrt{2}}$	$R\left(1 - \frac{y_z}{2}\right)$
z'	0	$\frac{1}{\sqrt{2}}$	$+\frac{1}{\sqrt{2}}$	$R\left(1 + \frac{y_z}{2}\right)$

Les coefficients M et N prennent alors les valeurs (*voir* Note I)

$$M = \frac{4\pi}{3}\left(1 + \frac{3}{5} y_z\right), \qquad N = \left(1 - \frac{3}{5} y_z\right)\frac{4\pi}{3}.$$

On constate que la cavité produit au centre les champs suivants :

Dans la direction Oy,

$$\frac{4\pi}{3} k_0 E_y;$$

Dans la direction Oz,

$$\frac{4\pi}{3} y_z \left(\beta - \frac{3k_0}{5}\right) E_y.$$

Reste à évaluer l'action des dipôles situés à l'intérieur de la cavité. Le champ local agissant sur un ion possède deux composantes F_y et F_z. La composante F_z, nulle en absence de déformation, est sûrement proportionnelle à y_z. Le champ résultant dû à cette composante est proportionnel à $(y_z)^2$ et, par suite, négligeable.

Le problème revient à rechercher les champs créés sur Oy et Oz par des dipôles du type $d\mathbf{M} = \alpha \mathbf{F}_y$. Le champ supplémentaire créé sur Oy par un tel dipôle, par suite du déplacement de l'ion, est égal à

$$h_y = (yz) \frac{y_z(9\delta^2 - y^2)}{\delta^7} dM.$$

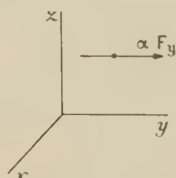


Schéma 4.

On voit immédaitement que la somme des quantités h_y est nulle, Suivant E_y, on a un champ local

$$F_y = E_y + \frac{4\pi}{3} k E_y.$$

Suivant Oz, on retrouve pour le champ résultant des dipôles initialement situés sur une sphère une formule du type

$$dH_z = B y_z \frac{dM}{\mu^3},$$

B ayant la même valeur que dans le cas de la dilatation z_z. On en déduit

$$F_{2z}(\text{ion Cl}^-) = \frac{4\pi}{3} y_z \left(-\frac{3k_0}{5} + \beta\right) E_y - \frac{4,8}{\mu^3} \alpha_2 \left(1 + \frac{4\pi}{3} k_0\right) y_z E_y + \frac{41}{\mu^3} \alpha_1 \left(1 + \frac{4\pi}{3} k_0\right) y_z E_y,$$

$$F_{1z}(\text{ion Na}^+) = \frac{4\pi}{3} y_z \left(-\frac{3k_0}{5} + \beta\right) E_y - \frac{4,8}{\mu^3} \alpha_1 \left(1 + \frac{4\pi}{3} k_0\right) y_z E_y + \frac{41}{\mu^3} \alpha_2 \left(1 + \frac{4\pi}{3} k_0\right) y_z E_y,$$

Uutilisant le fait que

$$P_{2z} = \frac{4\alpha_2}{\mu^3} F_{2z} + \frac{4\alpha_{yz}}{a^3} \left(E_y + \frac{4\pi}{3} k_0 E_y\right),$$

$$P_{1z} = \frac{4\alpha_1}{\mu^3} F_{1z},$$

On obtient, en ajoutant membre à membre les deux relations précédentes,

$$\frac{P_{1z} + P_{2z}}{E_y} = \frac{4\alpha_{yz}}{\mu^3} \left(1 + \frac{4\pi}{3} k_0\right) + 4 y_z \left[\frac{4\pi}{3} \frac{\alpha_1 + \alpha_2}{\mu^3} \left(\beta - \frac{3k_0}{5}\right) + \left(1 + \frac{4\pi}{3} k_0\right) \times \left(-4,8 \frac{\alpha_1^2 + \alpha_2^2}{\mu^6} + 41 \frac{2\alpha_1\alpha_2}{\mu^6}\right)\right].$$

Comme, d'autre part,

$$\frac{P_{1z} + P_{2z}}{E_y} = \beta y_z,$$

on a finalement

$$\beta = \frac{4c}{\mu^3} \left(1 + \frac{4\pi}{3} k_0\right) + 4 \left[\frac{4\pi}{3} \left(\beta - \frac{3k_0}{5}\right) \frac{\alpha_1 + \alpha_2}{\mu^3} + \left(1 + \frac{4\pi}{3} k_0\right) \times \left(-4,8 \frac{\alpha_1^2 + \alpha_2^2}{\mu^6} + 41 \frac{2\alpha_1\alpha_2}{\mu^6}\right)\right].$$

On obtient ainsi

$$c = 0,74 . 10^{-24}.$$

La valeur obtenue est nettement plus faible que celles de a et b, mais n'est pas négligeable, comme nous l'avions supposé antérieurement [6].

Conclusion. — En utilisant le raisonnement de Lorentz pour le calcul du champ interne et en supposant la polarisabilité de l'ion Na^+ constante, les termes du tenseur des polarisabilités de l'ion Cl^- ont pour expression

$$\alpha_{xx} = 3,53 . 10^{-24} + 5,42 . 10^{-24} x_x + 4,5 . 10^{-24} y_y + 4,5 . 10^{-24} z_z,$$

$$\alpha_{yy} = 3,53 . 10^{-24} + 4,5 . 10^{-24} x_x + 5,42 . 10^{-24} y_y + 4,5 . 10^{-24} z_z,$$

$$\alpha_{zz} = 3,53 . 10^{-24} + 4,5 . 10^{-24} x_x + 4,5 . 10^{-24} y_y + 5,42 . 10^{-24} z_z,$$

$$\alpha_{yz} = 0,74 . 10^{-24} y_z,$$

$$\alpha_{zx} = 0,74 . 10^{-24} z_x,$$

$$\alpha_{xy} = 0,74 . 15^{-24} x_y.$$

Les auteurs remercient MM. Barriol et Chapelle, professeurs à la Faculté des Sciences de Nancy, d'avoir dirigé ce travail.

NOTE I.

Champ créé en son centre par une cavité ellipsoïdale creusée dans un diélectrique de polarisation uniforme. — On sait [7] que lorsqu'on isole un ellipsoïde dans un milieu uniformément polarisé, le champ que cette cavité exerce en un point intérieur quelconque est constant. Suivant les axes a, b, c de l'ellipsoïde, il est nécessaire de remplacer la constante $\frac{4\pi}{3}$ qu'introduirait une sphère par trois coefficients L, M, N tels que

$$L + M + N = 4\pi.$$

Le coefficient L est donné par la formule

$$L = 2\pi abc \int_0^\infty \frac{d\lambda}{(a^2+\lambda)[(a^2+\lambda)(b^2+\lambda)(c^2+\lambda)]^{\frac{1}{2}}};$$

M et N s'en déduisent par permutation circulaire.

Lorsque l'ellipsoïde est voisin d'une sphère, on peut poser

$$a = R + \varepsilon_1, \qquad b = R + \varepsilon_2, \qquad c = R + \varepsilon_3,$$

ε_1, ε_2, ε_3, étant des quantités petites. On trouve alors

$$L = \frac{4\pi}{3}\left(1 + \frac{2}{5}\,\frac{\varepsilon_2 + \varepsilon_3 - 2\varepsilon_1}{R}\right)$$

et, de même,

$$M = \frac{4\pi}{3}\left(1 + \frac{2}{5}\,\frac{\varepsilon_3 + \varepsilon_1 - 2\varepsilon_2}{R}\right),$$

$$N = \frac{4\pi}{3}\left(1 + \frac{2}{5}\,\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2 - 2\varepsilon_3}{R}\right).$$

Pour un ellipsoïde de révolution autour de Oz, tel que

$$\varepsilon_1 = 0, \qquad \varepsilon_2 = 0, \qquad \varepsilon_3 = R z_z,$$

$$L = M = \frac{4\pi}{3}\left(1 + \frac{2}{5} z_z\right).$$

Dans le cas d'un cisaillement, on a

$$\varepsilon_1 = 0, \qquad \varepsilon_2 = -\frac{R}{2} y_z, \qquad \varepsilon_3 = \frac{R}{2} y_z,$$

ce qui entraîne

$$M = \frac{4\pi}{3}\left(1 + \frac{3}{5} y_z\right), \qquad N = \frac{4\pi}{3}\left(1 - \frac{3}{5} y_z\right).$$

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Barriol J. — *J. Physique Rad.*, 1947, **8**, 327.

[2] Leontovich et Mandelstam. — *Phys. Z. Sowiet Union*, 1932, **1**, 317.

[3] Pockels. — Lehrbuch der Kristalloptik, Teubner, Leipzig et Berlin, p. 480.

[4] Mott et Gurney. — Electronic Process in ionic crystal, Oxford, 1940.

[5] Schockley. — *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1946, **21**, 9.

[6] Marck P. et Taurel L. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **234**, 1066.

[7] Winkelmann. — Handbuch der Physik, Leipzig, 1908 p. 141.

ÉTUDE DES PROPRIÉTÉS DU BORE

Par J. LAGRENAUDIE.
Laboratoire de Physique E. N. S.

Sommaire. — Le bore présente, selon des mesures poussées jusque vers 700° C, une énergie intrinsèque d'environ 1,28 eV et les couches minces sont transparentes en infrarouge avec seuil d'absorption au voisinage de 1 μ. Bien que voisin du silicium, il ne présente encore que des effets détecteurs insignifiants, probablement par suite de défauts de structure.

Rappelons que les trois catégories d'échantillons étudiés se composent de :

A. Bore obtenu par dissociation de BBr_3 en étincelle oscillante, chez M. Hackspill en 1934;

B. Bore cracké et déposé sur verre à partir de B_2H_6;

C. Bore fondu au laboratoire de M. Trombe.

Un premier article a concerné la conductivité à basse température et la constante diélectrique.

Conductivité aux températures élevées. — Le bore de provenance A ou C a été placé dans un dispositif assurant un contact à pression jusqu'à température élevée, celle-ci étant mesurée par un couple fer-constantan ou cuivre-constantan. La mesure de résistance se faisait directement, sans emploi de sondes (celles-ci, pour être assez adhérentes et de faible surface, doivent être en platine soudé sur le bore; le palladium est également utilisable); les morceaux de bore ont été, si possible, cuivrés aux extrémités pour minimiser les résistances de contact avec les pièces de serrage, mais cependant les courbes obtenues, sur le diagramme classique $\log \sigma /\!\!/ \frac{1}{T}$, manifestent des irrégularités par variation de surface du contact, en présentant des segments à peu près rectilignes de même pente, mais décalés. Une difficulté tient aussi à l'écart thermique inévitable entre le thermo-couple et le bore.

Tenant compte de ces erreurs, on trouve que les courbes $\log \sigma /\!\!/ \frac{1}{T}$ sont composées de plusieurs segments rectilignes de pentes croissantes vers les hautes températures; dans certains cas, on a une courbure continue sans coude net; ceci s'interprète, comme pour les mesures à basse température, par l'existence de plusieurs énergies d'excitation d'impuretés, en plus de l'énergie intrinsèque.

Les morceaux de provenance A manifestent, dès la température ordinaire, une conductivité principalement intrinsèque, avec énergie d'activation de 1,3 eV environ. Les morceaux du type C, plus impurs, n'atteignent ce cas qu'aux températures les plus élevées. Si l'on désigne par δ l'écart du niveau de Fermi à la bande électronique comportant les porteurs libres, en principe la bande liée ici (le B étant de type *p* selon l'effet thermoélectrique) et ε l'énergie d'activation des impuretés jouant le rôle principal à la température étudiée, on a, lorsque ε est assez élevé, $\delta \sim \frac{\varepsilon}{2}$, selon la théorie

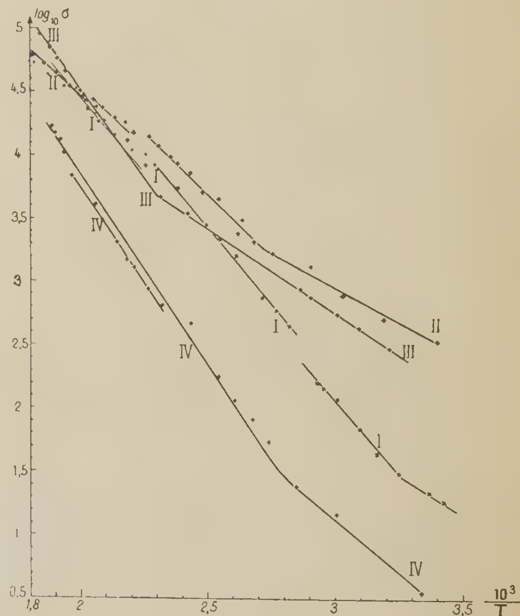


Fig. 1.

I. $\delta^* \sim 0,5$ eV vers 500° K;
II. $\delta^* \sim 0,22$ eV vers 50° C et $\sim 0,32$ eV vers 220° C;
III. $\delta^* \sim 0,3$ eV vers 70° C et $\sim 0,56$ eV vers 280° C;
IV. $\delta^* \sim 0,6$ eV vers 500° K et 0,32 eV vers 300° K.

de Wilson; δ est fourni par la pente de la courbe $\log \sigma /\!\!/ \frac{T}{1}$, lorsque celle-ci est rectiligne, car alors

$$\delta^* = \delta - T \frac{d\delta}{dT}$$

qui se déduit directement de la pente $\frac{d \log \sigma}{d\left(\frac{1}{T}\right)}$, est égal à δ.

On trouve ainsi, sur les morceaux de la provenance C,

$$\delta^* \sim 0{,}15, \quad 0{,}20, \quad 0{,}26, \quad 0{,}30, \quad 0{,}36$$

et, vers les hautes températures, δ^* tend vers 0,6 au moins. Ceci conduit à des énergies d'impuretés élevées : 0,30, 0,40, 0,52, 0,60, 0,70 eV environ et à une énergie intrinsèque d'au moins 1,2 eV. Les résultats obtenus avec les morceaux de provenance C confirment, d'une part, les mesures de

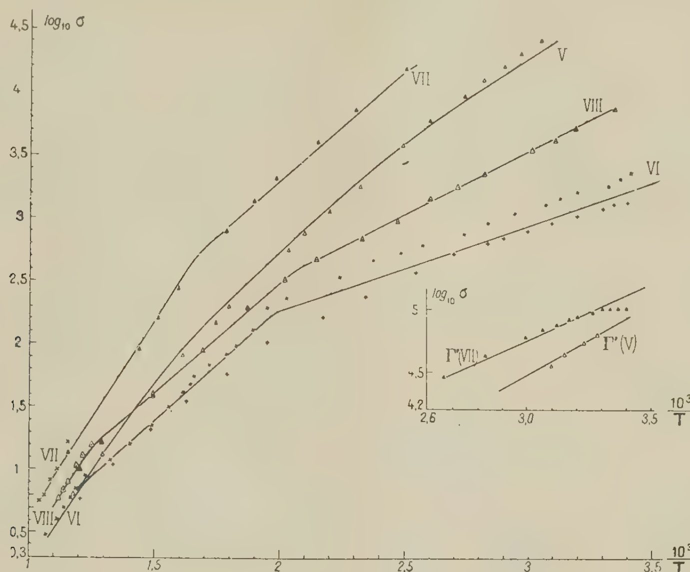


Fig. 2.

V. $\delta^* \sim 0{,}26$ eV à 20° C et 0,64 eV à 500° C;
VI. $\delta^* \sim 0{,}14$ eV à 20° C; 0,36 eV à 310° C et 0,60 à 600° C;
VII. $\delta^* \sim 0{,}2$ eV vers 300° K; 0,32 eV à 500° K et 0,64 eV à 800° K;
VIII. $\delta^* \sim 0{,}20$ eV vers 30° C; 0,32 eV à 300° C et 0,64 eV à 600° C.

Weintraub ou celles qui concernent les morceaux de provenance A, d'autre part, les mesures de conductibilité à basse température. Les énergies de 0,30 à 0,70 eV sont attribuables, soit à des impuretés chimiques anormales (de valence élevée), soit à des défauts de réseau (lacunes, atomes interstitiels). Ce dernier cas se rencontre dans le silicium irradié en neutrons. L'énergie intrinsèque est de 1,25 à 1,30 eV. Il se peut qu'en réalité elle soit différente à la température ordinaire, car les mesures thermiques se traduisant par :

$$\log \sigma \sim \text{const.} - \frac{E}{2kT},$$

on aura, si $E \diagdown E_0 + aT$ ($a = \text{const.}$),

$$\log \sigma \sim \text{const.} - \frac{E_0}{2kT}$$

et l'on mesure E_0, énergie intrinsèque prise au zéro absolu. La valeur E à température ambiante est fournie directement, au contraire, par l'étude des transitions optiques.

Les expériences précédentes soulignent le grand intérêt du bore en tant que thermistor et montrent que celui qui est tiré de BBr_3 est plus pur que celui de provenance C, tiré du bore amorphe par fusion sous vide. Le chauffage du bore, pour les mesures de conductibilité, a été effectué dans le vide ou sous atmosphère d'hydrogène.

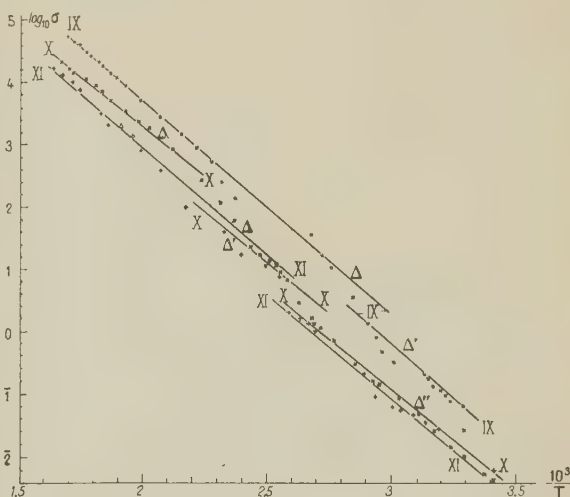


Fig. 3.

δ^* — 0,65 eV pour les trois courbes, dès la température ordinaire; bore provenant de BBr_3 en étincelle oscillante.

Étude de la transparence du bore en infrarouge. — L'existence d'une région de photo-

conductivité du bore dans le visible et l'infrarouge très proche, avec seuil vers 0,95 μ, et la corrélation entre les propriétés optiques et photoélectriques dans le cas du germanium et du silicium, selon Fan et Becker, suggèrent une étude de la transparence du bore en infrarouge. Jusqu'ici, le bore disponible est microcristallin et assez impur, ce qui nécessite l'utilisation de couches très minces sur support transparent : on a ainsi mis en œuvre des couches de bore déposées sur verre par cracking de B_2H_6; elles présentent aux rayons X un diagramme flou, indiquant une cristallisation imparfaite, mais sont de bonne pureté chimique (environ 1/1000e de silicium).

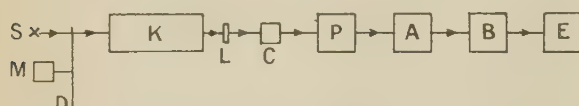


Schéma de montage.

S, source au Zirconium ; M, moteur synchrone ; D, disque tournant (hachage à 125 p/s) ; K, monochromateur double Kipp ; L, lame étudiée; C, cellule au Pb S; P, Préamplificateur ; A, amplificateur accordé sur 125 p/s ; B, détecteur synchrone ; E, appareil de mesure.

La mesure se fait par réception de lumière monochromatique hachée à 125 p/s sur la lame étudiée, puis une cellule photoélectrique au PbS; le signal est amplifié par un amplificateur accordé et envoyé à un détecteur synchrone. La source lumineuse est une lampe pointolite au zirconium, qui présente un pic aigu d'intensité vers 1,5 μ et le monochromateur est du type double à prismes de NaCl, fabriqué par Kipp (Delft, Pays-Bas).

On mesure le signal obtenu sur la cellule après traversée de verre seul et après traversée du verre boré. Le rapport des deux valeurs représente le pouvoir transmissif du bore, en négligeant les réflexions verre-bore et bore-air; la première représente une faible perte lumineuse, parce que le bore adhère fortement au verre et, par transparence à travers celui-ci, présente un aspect noir mat; en tous cas, son pouvoir réflecteur est très faible; à la sortie, la lumière qui atteint la surface bore-air est très affaiblie par absorption, et l'on peut négliger la réflexion de sortie; la surface externe du bore, côté air, est un peu rugueuse.

Les mesures de répartition spectrale donnent, en fonction de λ, le logarithme de la transmissivité, à une constante additive près; une mesure est faite, à un λ donné, pour obtenir la transmissivité absolue de l'ensemble verre-bore et du verre seul, d'où celle du bore.

Le bore étudié ici, obtenu par cracking, de B_2H_6,

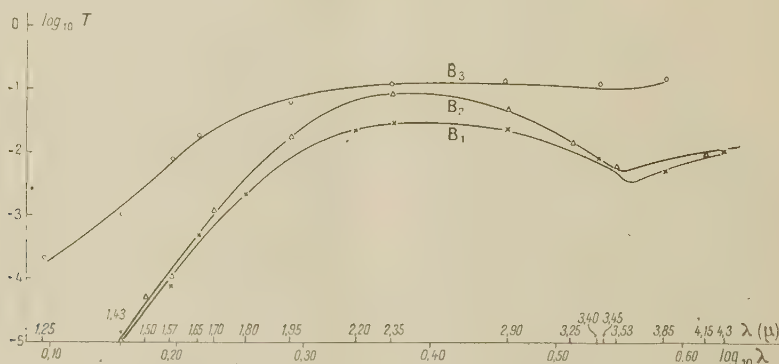


Fig. 4. — Pouvoir transmissif T en infrarouge pour échantillons de bore déposé sur verre, opaques dans le visible.

est très absorbant, probablement par impuretés physiques (défauts de réseau). La transmissivité croît très rapidement vers 1,4 μ; pour $\lambda < 1,4\ \mu$, l'opacité trop grande des morceaux notés B_1, B_2, B_3, B_4, opaques à l'œil nu, rend les mesures impossibles; avec les échantillons notés B'_1, B'_2, B'_3, transparents en lumière visible, la mesure est possible depuis 0,4 μ environ, jusqu'à 4 μ; les mesures sont peu précises aux extrémités du domaine étudié, par faible sensibilité de la cellule au PbS, opacité du verre ou faible énergie lumineuse. Avec les échantillons B'_1, B'_2, B'_3, la transmissivité croît rapidement à partir de 1 μ, alors qu'elle varie peu dans le visible. Toutes les courbes dénotent une décroissance de transparence vers 3,5 μ, ce qui correspond à une bande d'absorption due, soit au réseau, soit à un niveau d'impuretés (0,33 eV environ), du type défaut de réseau.

Avec les morceaux B_1, B_2, B_3, B_4, opaques en visible, la transmissivité, maximum vers 2,5 μ, diminue dans un rapport de 100 à 1000 entre 1,3, et 1,8 μ; cela peut donner éventuellement au bore, comme au silicium, un intérêt optique (filtres pour infrarouge).

Les mesures de transmissivité absolues, en comparaison avec l'épaisseur approximative et la résistance de surface, donnent :

	T (vers 3,85 μ).	Epaisseur (mm).	R (290° K).
B_1	~ 0,10	~ 3.10^{-2}	~ 1,5 MΩ
B_2	~ 0,02	~ 2.10^{-2}	850 kΩ
B_3	~ 0,18	~ 2.10^{-2}	500
B_4	~ 0,18	~ 2.10^{-2}	750

La résistivité et la transmissivité (à épaisseur donnée) ne varient pas dans le même sens; l'absorption n'est pas due seulement à des porteurs libres et la mobilité peut varier fortement, d'un morceau à l'autre, suivant l'état cristallin (très imparfait).

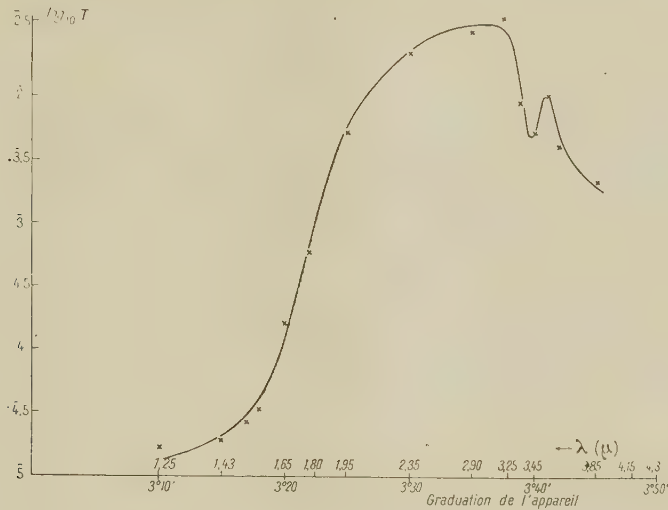


Fig. 5. — Transparence en infrarouge du bore n° 4, opaque dans le visible.

En prenant un ordre de grandeur moyen, on aura

$$T = 0,10 \quad \text{ou} \quad \log_e T = 2,3 \times \bar{1} = -2,3,$$
$$e = 2.10^{-3}\ \text{cm} \quad \text{et} \quad R = 10^6\ \Omega.$$

D'où

$$\rho = Re = 2.10^3\ \Omega,$$
$$K(\text{const. d'absorption}) = -\frac{\log_e T}{e} \# 10^3.$$

La résistivité relativement faible indique que le bore renferme de nombreuses impuretés, ce qui s'accorde avec la forte constante K rapportée à 1 cm; les impuretés actives au point de vue conductibilité, seraient de nature physique, en majorité; elles joueraient, en outre, un rôle direct dans l'absorption, en permettant des transferts d'électrons d'un niveau à un autre.

La répartition spectrale de T s'accorde avec un seuil photoélectrique vers 0,95 ou 1 μ. Les mesures optiques, comme dans le cas de Si et Ge, indiquent donc l'énergie intrinsèque et celle-ci se place vers 1,2 eV à la température ordinaire.

Il y a un léger écart, de l'ordre de 0,05 eV, entre les deux énergies intrinsèques, à 0 et 300° K, d'après ce qui précède. Avec $E = E_0 + aT$, on aurait environ

$$a = \frac{-5.10^{-2}}{300} \sim -1,5.10^{-4}.$$

E diminuerait ainsi par élévation de température ou dilatation du réseau, comme dans le cas de Si et Ge et ceci serait en accord avec l'existence d'états électroniques de surface, sur le B comme sur le Si. Cependant, on doit noter que le bore

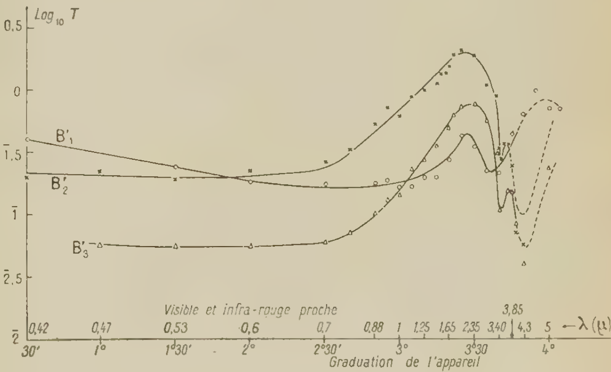


Fig. 6. — Transparence en visible et infrarouge d'échantillons B'_1, B'_2 et B'_3, transparents dans le visible.

étudié ici en infrarouge, mal cristallisé, a une structure sans doute moins compacte qu'un produit fondu, tel que les bores des provenances A et C.

Étude des effets dissymétriques sur le bore. — Le contact bore-métal a été étudié, au point de vue des effets rectifiants, le bore étant, sous divers aspects, voisin du silicium.

Le bore de provenance A (tiré de BBr_3), trop

résistant, ne donne aucun effet sensible, sauf en certains points, au contact de métaux très électropositifs (Na, Ca, Mg, Be, Al), où l'on a obtenu seulement 10^{-7} A, sous 120 V et 50 c, avec charge de 8 MΩ, dans le sens B → métal.

Le bore de provenance C, beaucoup moins résistant, donne des courbes $i - v$, à 50 c, sans dissymétrie apparente, mais rectilignes, ou incurvées en S par effet thermique. Cependant, en intercalant un microampèremètre dans le circuit, on note un courant redressé, très faible, de l'ordre de quelques microampères, la tension appliquée étant de quelques volts et la résistance du circuit, bore inclus, de l'ordre de 10^4 Ω. Ceci s'applique à des contacts à pointe, sans que la nature de celle-ci présente une influence nette; on peut alors invoquer des effets thermoélectriques, par échauffement du contact, bien que le sens favorisé soit tantôt B → métal, tantôt l'opposé, tandis que le B apparaît toujours selon les observations d'effet thermoélectrique, comme de type *p*. Il y a probablement addition de deux effets différents, dont l'un est dû à une faible barrière de contact.

En serrant le bore entre deux lamelles de plomb, réalisant de larges contacts, on retrouve une légère dissymétrie (1 μA sous 2,5 V et 13 000 Ω), alors que l'échauffement doit être ici négligeable. Le bore de cracking déposé sur verre présente aussi de légères dissymétries aux contacts, à large surface, formés par des lames d'étain.

On peut négliger tout effet non ohmique, comme le montre l'oscillographe, au sujet du contact du bore et du cuivre déposé sur lui électrolytiquement; peut-être y-a-t-il diffusion d'atomes Cu, dans le bore, comme Pantchechnikov l'a supposé dans le cas du contact du germanium et du Cu déposé par électrolyse sur ce dernier.

Au contact entre diverses pointes métalliques (Al, Mg, Zn, Cb, W, Mo, Pt) et le B de cracking, en paillettes, on note aussi une légère dissymétrie, qui peut même changer de sens avec la tension appliquée. L'effet est ainsi complexe, comme la structure du B de cracking est très imparfaite.

Cependant, sur deux morceaux de bore de provenance C, tirés du B amorphe par fusion, des effets rectifiants sont observables sur l'oscillographe, bien que le contact soit très délicat. On peut utiliser des pointes en acier, W ou Mg; le sens favorisé est B → métal, conformément à l'effet thermoélectrique, mais la tension doit être faible (inférieure à 4 V) et la résistance de charge élevée : avec 250 kΩ de charge, on a pu observer 1 μA redressé, sous 2,5 V ou 2 μA sous 4 V, à 50 c. L'effet détecteur a pu s'observer aussi à 5 et 400 Mc avec pointe en W : 0,1 à 0,5 μA sous 0,1 V, (tension nominale. donnée par le générateur H. F.) dans le sens B → métal.

Avant de pouvoir généraliser et surtout utiliser des effets rectifiants de ce genre, il sera nécessaire d'obtenir du bore monocristallin, de mobilités assez élevées et de pureté contrôlable. Cependant, les effets observés seraient à l'appui de l'existence d'une barrière de surface sur le bore, analogue à celle du silicium, mais vraisemblablement bien plus faible (moindre densité des états de surface, par exemple).

Je tiens à remercier M. le Professeur Rocard, grâce à qui ce travail a été réalisé au Laboratoire de Physique, E. N. S.

Manuscrit reçu le 11 septembre 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

WEINTRAUB. — *J. Ind. Eng. Chem.*, 1913, **5**, 112.
FREYMANN et STIEBER. — *C. R. Acad. Sc.*, 1934, **199**, 1109.
FAN et BECKER. — Semi Conducting Materials, Butterworths Scientific Public., London, 1951.
TORREY et WHITMER. — Crystal Rectifiers, Radiat. Labor., Series M. I. T., U. S. A.

ESSAI D'INTERPRÉTATION DES SPECTRES D'ABSORPTION DANS LE PROCHE INFRAROUGE. I. HYDROCARBURES SATURÉS ALIPHATIQUES

Par GERMAIN GAUTHIER [1].

Laboratoire des Recherches physiques à la Sorbonne.

Sommaire. — Avec un spectrographe infrarouge à réseau, nous avons étudié, entre 0,8 et 1,9 μ environ, les spectres d'absorption, à l'état liquide, de dix hydrocarbures aliphatiques saturés. La liaison carbone-hydrogène se manifeste par des séries (perturbées ou non perturbées) de bandes d'absorption — attribuables en première approximation aux groupements CH, CH_2 ou CH_3 — entre lesquelles se mesurent des maxima beaucoup moins intenses, explicables par des combinaisons de fréquences. Celles-ci permettent, par l'étude seule du proche infrarouge, d'obtenir les nombres d'ondes d'oscillations fondamentales, qui se placent dans la partie du spectre possédant de beaucoup plus grandes longueurs d'onde.

Nous avons utilisé un spectrographe à miroirs, muni d'un réseau par réflexion (580 traits/mm), rappelant les montages de Barnes [3], de Hardy [18] et surtout celui de Pfund [26]. En recourant à des miroirs plans, percés en leur centre d'une ouverture, on peut faire travailler les miroirs sphériques concaves sous une incidence normale et obtenir de bonnes images. Cet instrument a déjà été décrit par Yeou Ta [31], mais nous l'avons complètement transformé et reconstruit pour obtenir une excellente stabilité et surtout une résolution beaucoup plus grande. En effet, l'utilisation, comme récepteur, d'une cellule au sulfure de plomb, reliée à un amplificateur à trois étages, fonctionnant avec des radiations modulées [25], [16], a permis d'arriver à une sensibilité au moins 100 fois supérieure à celle de la pile thermoélectrique précédemment employée. On peut alors travailler avec des fentes beaucoup plus fines. Le courant, débité par l'amplificateur et proportionnel à l'intensité des radiations arrivant sur la cellule, est redressé et envoyé dans un galvanomètre A. O. I. P. d'une seconde de période. L'enregistrement des déviations de ce galvanomètre, en fonction des longueurs d'onde, se fait sur un papier photographique sensible, la liaison avec le spectrographe s'effectuant au moyen d'un système de trois miroirs plans précédemment décrit [23]. Pour des raisons de convenance pratique, chaque moitié de notre région d'étude s'enregistrait séparément en 15 m environ.

L'ensemble de cet appareil permettait l'examen de la région spectrale 0,8-1,9 μ, dans laquelle la cellule, utilisée comme récepteur, possède une sensibilité particulièrement élevée. La comparaison de la structure fine des bandes de la vapeur d'eau atmosphérique à 1,38 et 1,87 μ, telle que nous l'avons enregistrée, relativement à celle qui ressort des spectres de Plyler [27], [28] indique un pouvoir de résolution de 6 cm^{-1} environ : 1 mm du papier photographique correspond à 5 cm^{-1} vers 5 000 cm^{-1} et à 8 cm^{-1} vers 10 000 cm^{-1}.

([1]) Actuellement Professeur au Collège Saint-Jean, province de Québec (Canada).

Avec tous les spectres des hydrocarbures étudiés ici à l'état liquide, nous trouvons une succession de régions d'absorption, séparées par des zones d'opacité beaucoup plus faible. Dans tous les cas,

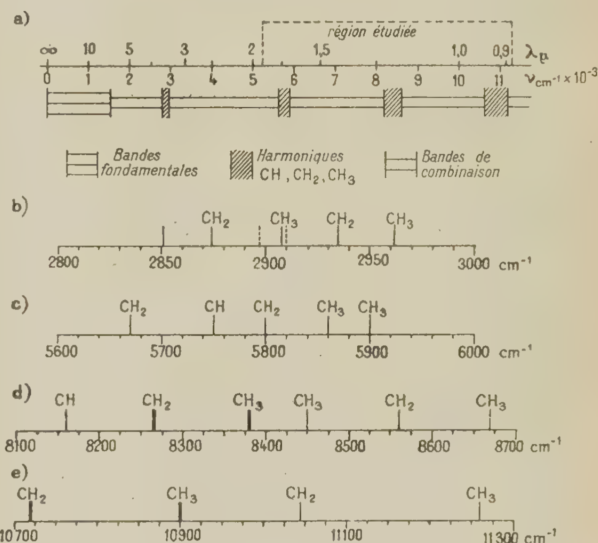


Fig. 1.

a. Aspect général du spectre des hydrocarbures; *b.* Structure à 3,4 μ de la bande fondamentale; *c.* Structure à 1,7 μ de l'harmonique 2 ν; *d.* Structure à 1,2 μ de l'harmonique 3 ν; *e.* Structure à 0,9 μ de l'harmonique 4 ν.

d'ailleurs, on peut mettre en évidence un nombre plus ou moins élevé de maxima distincts. *Les zones de forte absorption correspondent à des harmoniques des vibrations fondamentales entre le carbone et l'hydrogène, situées vers* 2 900 cm^{-1} *et les zones de plus faibles absorption à des combinaisons.* Nous les étudierons successivement. La figure 1 a donné un aspect général du spectre des hydrocarbures dans notre région.

Les épaisseurs de liquide, qui sont nécessaires pour faire apparaître les bandes de combinaison, apparaissent 2 à 10 fois plus fortes que celles qui conviennent aux bandes harmoniques. Pour ces

dernières, nous avons utilisé des cuves variant entre 0,1 cm dans la région 1,7-1,9 μ et 5 cm dans la région 0,9-1,0 μ. On voit donc que, sans demander des quantités très importantes de liquide, l'utilisation du proche infrarouge, dans un but analytique, ne peut pas s'effectuer avec des échantillons de quelques millimètres cubes, comme on arrive à le faire entre 6 et 15 μ, par exemple.

Dans ce qui suit, conformément aux idées développées par d'autres auteurs, nous considérerons les groupements CH, CH_2 et CH_3 des hydrocarbures comme isolés du reste de la molécule et vibrant pour leur propre compte. Cette hypothèse, commode pour l'interprétation, est admissible, en première approximation parce que, pour les hydrocarbures en particulier, l'ensemble de la molécule n'exerce qu'une influence faible sur les vibrations des liaisons carbone-hydrogène.

Ce travail reproduit une partie d'une Thèse de Doctorat ès Sciences (Paris, 1951) qui n'a pas été publiée, et qui a donné lieu seulement à trois Notes aux *Comptes rendus de l'Académie des Sciences* (1950, 231, 837, 962 et 1453).

1. **Bandes harmoniques.** — Suivant la théorie, les vibrations fondamentales de valence carbone-hydrogène se placent dans la région de 3,4 μ (2 900 cm^{-1}) : deux pour le groupement CH_3 dont une double dégénérée (en première approximation), deux pour le groupement CH_2 et une pour le groupement CH.

a. ATTRIBUTION DES MAXIMA OBSERVÉS AUX GROUPEMENTS CH, CH_2 ou CH_3. — Les résultats obtenus, aussi bien par absorption que par diffusion (spectre Raman), concernant les vibrations fondamentales (région de 3,4 μ), que nous n'avons pas étudiées personnellement, sont résumés dans la figure 1*b*. Suivant Kohlrausch et Köppl [22], les nombres d'ondes sont : 2851, 2874, 2908 (dédoublé en 2897 et 2910 cm^{-1} par Herz, Kahovec et Wagner [19]), 2935 et 2962 cm^{-1}. Chabbal [7] donne des nombres différant de 10 cm^{-1} en moins, et identifie 2890 cm^{-1} provenant de CH_3, au lieu de 2890 cm^{-1}.

Comme on peut le voir par le tableau suivant, l'interprétation du premier harmonique dans la région 5600-5900 cm^{-1} varie assez fortement suivant les auteurs. *Nous avons trouvé quatre bandes pour les hydrocarbures à chaîne droite et cinq pour les hydrocarbures à chaîne ramifiée*, la bande de 5750 cm^{-1} n'apparaissant que pour ces derniers (*fig.* 2). La reconnaissance d'un hydrocarbure à chaîne ramifiée est donc immédiate par ce procédé.

Positions moyennes (cm^{-1})....	5670.	5750.	5800.	5860.	5900.
R. Freymann [10], [12]....	CH_2		CH_3	CH_2	CH_3
P. Barchewitz [1].........	CH_2	CH_3	–	CH_2	CH_3
U. Liddel et G. Kasper [24]..	CH_2	–	CH_2	CH_3	CH_3
Nos attributions..........	CH_2	CH	CH_2	CH_3	CH_3

Pour les harmoniques suivants, Freyman, en particulier, n'ayant pu mettre en évidence que deux composantes, pensait qu'ils correspondaient à une structure différente du fondamental et du premier harmonique. En réalité, *si l'on opère avec une dispersion suffisante, le fondamental et les harmoniques successifs possèdent la même structure complexe.*

Le deuxième harmonique (3 ν) se décompose en deux maxima intenses, escortés de quatre plus faibles. Etude antérieure de Brackett [5]. Suivant la figure 1 *d*, les fréquences de l'hexane se présentent à 8265, 8379, 8451 et 8670 cm^{-1} et les hydrocarbures à chaîne ramifiée possèdent, en plus, une bande CH à 8160 cm^{-1}.

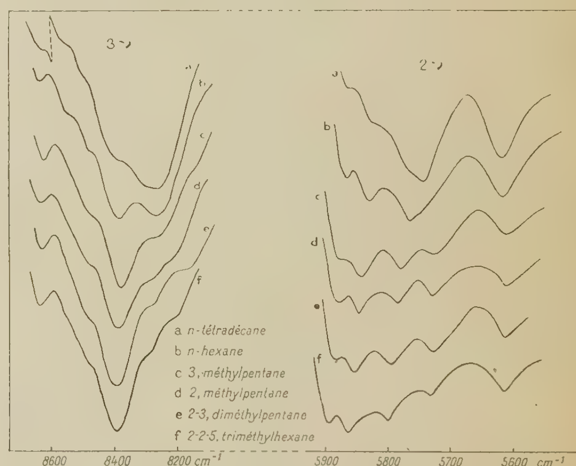


Fig. 2. — Spectres des harmoniques 2 ν et 3 ν de quelques carbures, sous 1 et 5 mm.

Le troisième harmonique (4 ν) tombe dans la région de 0,9 μ, qui est moins favorable relativement au pouvoir de résolution du spectrographe utilisé. Pour l'hexane (*n*), on trouve néanmoins des maxima à 10720, 10900, 11045 et 11264 cm^{-1} (*fig.* 1 *e*).

b. CALCUL DES POSITIONS DES MAXIMA RELATIFS AUX GROUPEMENTS CH, CH_2 et CH_3. — La formule de Kratzer, reliant la fréquence ν_n de l'harmonique d'ordre n avec la fréquence ν_0 de l'oscillation d'amplitude infiniment petite, a déjà donné lieu à diverses applications et s'écrit

$$\nu_n = n\nu_0(1 - nx + n^2y - n^3z \ldots),$$

où x, y, z, ... représentent de petites constantes. S'il n'existait pas d'anharmonicité ($x=y=z=0$), en portant en abscisses ν_n et, en ordonnées, n, nous obtiendrons une droite. Une courbe, inclinée par rapport aux axes, indique immédiatement la présence d'une harmonicité plus ou moins grande suivant la pente. Il est commode de se servir de la représentation, $\frac{\nu_n}{n}$ en abscisses et n en ordonnées plutôt que

de l'équation indiquée ci-dessus, car, par exemple pour une formule à deux termes ($y = z = 0$), on repère mieux l'existence d'une droite, sur un intervalle $\frac{\nu_n}{n}$ de 400 cm^{-1}, que celle d'une parabole sur une variation de 8000 cm^{-1}.

Les vérifications de la formule de Kratzer nous indiquent que, *pour le fondamental et les harmoniques successifs, elle représente assez correctement les résultats expérimentaux, sauf pour le premier harmonique* 2 ν. Celui-ci présente un écart de 40 à 70 cm^{-1}, suivant les suites considérées. Il n'est pas possible au moyen, par exemple de termes de degré supérieur, dans la formule de Kratzer, de trouver une courbe passant, à quelques cm^{-1} près, par tous les points expérimentaux : elle devrait changer de concavité, suivant que n est inférieur à 3 ou supérieur à 4, ce qui semble inadmissible. La dérivée seconde de la fonction s'annulerait entre 2760 et 2800 cm^{-1} et coïnciderait en même temps avec la valeur de ν_0, ce qui est impossible puisque cette dernière se présente comme notablement plus élevée. D'autre part, admettre que le premier harmonique 2 ν se montre inactif pour certaines vibrations — ce qui permettrait de n'en pas tenir compte pour le tracé des courbes de Kratzer — ne fait que déplacer le problème en le compliquant.

Nous pensons, *pour expliquer cette anomalie, faire intervenir un phénomène de résonance entre une vibration fondamentale de valence carbone-hydrogène et le premier harmonique d'une vibration de déformation carbone-hydrogène.* Il faut, bien entendu, que ces deux oscillations entrant en résonance possèdent la même symétrie. Cette explication, déjà proposée par Glockler et Renfrew dans le cas de l'éthane liquide [17], conduit à une perturbation dans les fréquences des vibrations fondamentales vers 2900 cm^{-1} et permet de les placer, ainsi que *tous* les harmoniques (y compris 2 ν) sur une courbe régulière.

Ainsi, pour l'hexane liquide, nous admettons qu'une vibration fondamentale de valence, vers 2908 cm^{-1}, résonne avec le premier harmonique 2 × 1460 cm^{-1} d'une vibration de déformation double dégénérée CH_3, ce qui fournit les deux bandes 2875 et 2942 cm^{-1} (l'intensité de la première atteint celle de la seconde, par suite du phénomène de résonance). De même, une vibration fondamentale de valence CH_3, vers 2940 cm^{-1} entrant en résonance avec l'harmonique 2 × 1470 cm^{-1}, produit les deux maxima vers 2910 et 2980 cm^{-1} (dès lors attribuables tous deux à CH_3). *La perturbation, par les*

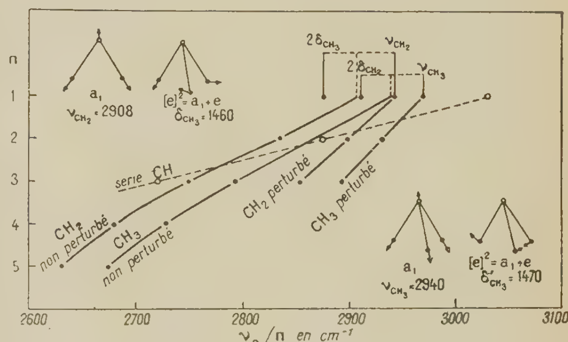


Fig. 3. — Séries des carbures expliquées par la résonance.

harmoniques des vibrations de déformation, conduit ainsi à une élévation des fréquences des vibrations de valence CH_2 *et* CH_3 *considérées.* Les vibrations à 2980 et 2940 cm^{-1} sont simples et ne peuvent résonner qu'avec une vibration harmonique de même symétrie, provenant de CH_3.

Le même phénomène de résonance ne peut pas avoir lieu, pour l'harmonique 2 ν des vibrations 2908 et 2940 cm^{-1}, avec l'harmonique 4 ν des vibrations 1460 et 1470 cm^{-1}, ni pour les harmoniques suivants, à cause du trop grand écart des nombres d'ondes. Il n'existe, par suite, aucune perturbation

CH_2 *perturbé.*

$\nu_0 = 2986$, $x = 0{,}0148$, $y = 0$.

n.	ν_n observé.	ν_n calculé.
1	2942	2942
2	5803	5796
3	8562	8562

CH_3 *perturbé*

$\nu = 3007$, $x = 0{,}0125$, $y = 0$.

n.	ν_n observé.	ν_n calculé.
1	2970	2970
2	5868	5864
3	8680	8680

CH

$\nu_0 = 3185$, $x = 0{,}0486$, $y = 0$.

n.	ν_n observé.	ν_n calculé.
1	3030	3024
2	5750	5750
3	8160	8160

CH_2 *non perturbé.*

$\nu_0 = 2986$, $x = 0{,}0260$, $y = 0{,}0004$,

$$\frac{\nu_n}{4} = 2986(1 - 0{,}0260\, n + 0{,}0004\, n^2).$$

n.	$\frac{\nu_n}{n}$ observé.	$\frac{\nu_n}{n}$ calculé.
1	2908	2910
2	2835	2835
3	2750	2763
4	2680	2694
5	2631	2628

CH_3 *non perturbé.*

$\nu_0 = 3013$, $x = 0{,}0243$, $y = 0{,}0004$

$$\frac{\nu_n}{n} = 3013\,(1 - 0{,}024\, n + 0{,}0004\, n^2).$$

n.	$\frac{\nu_n}{n}$ observé.	$\frac{\nu_n}{n}$ calculé.
1	2940	2931
2	–	2871
3	2793	2804
4	2728	2739
5	2674	2677

pour aucun des harmoniques des vibrations fondamentales situées près de 2900 cm^{-1}.

Les suites calculées sont indiquées dans le tableau page 21 et dans la figure 3.

Nous avons également porté, dans le même graphique, en trait discontinu, une suite de fréquences que nous pensons caractéristique de CH et, qui appartient en propre aux hydrocarbures à chaîne ramifiée. Elle est, comme l'on pouvait s'y attendre, beaucoup moins forte que les autres séries, étant donné que le nombre des groupements CH, dans les composés que nous avons étudiés, reste très inférieur à celui des groupements CH_2, par exemple. Le fondamental se placerait vers 3030 cm^{-1}, ce qui est en accord, à ± 5 cm^{-1} près, avec les spectres d'hydrocarbures publiés par le Bureau of Standards, à Washington.

c. Intensité des bandes harmoniques. — Freymann avait déjà montré que si l'on prend la différence de profondeur Δh, entre deux bandes de combinaison vers 1 μ, on peut déterminer le nombre d'atomes de carbone de la chaîne carbonée. Cette méthode donne des résultats beaucoup meilleurs en la transposant aux harmoniques 2ν et 3ν, et elle ne demande alors qu'une quantité de substance beaucoup plus réduite. La figure 4 montre les dénivellations Δh en millimètres pour diverses paires de composantes, caractéristiques, comme nous l'avons vu, de CH_2 et CH_3. (Les bandes les plus fortes sont

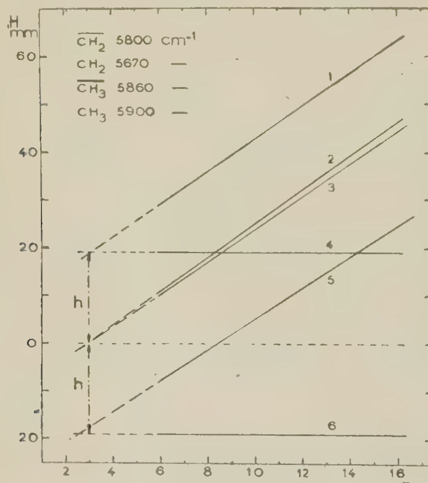


Fig. 4. — Analyse de l'harmonique 2ν.

1. $\overline{CH_2}$–CH_3; 2. CH_2–$\overline{CH_3}$; 3. $\overline{CH_2}$–$\overline{CH_3}$; 4. CH_2—CH_2; 5. CH_2—CH_3; 6. CH_3—CH_3; n = nombre de carbone dans la chaîne.

marquées d'un trait suscrit.) *Les deux composantes varient en intensité avec la longueur de la chaîne carbonée, mais la différence de ces intensités est indépendante, qu'il s'agisse des groupements* CH_2 *ou* CH_3.

L'étude quantitative des spectres d'absorption dans le proche infrarouge permet encore, d'une autre manière, de se relier à la longueur de la chaîne carbonée.

La bande CH_2 la plus intense, dans les harmoniques 2 et 3 vers 1,7 et 1,2 μ semblait se déplacer vers de plus basses fréquences, à mesure que la longueur de la chaîne carbonée croissait : en réalité,

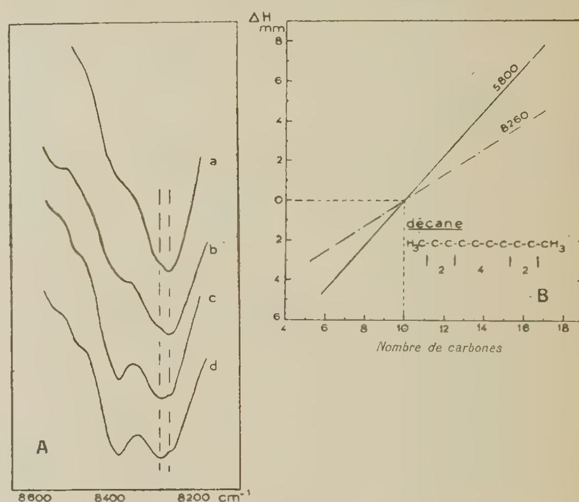


Fig. 5.

A. Dédoublement de la bande 8260 cm^{-1} sous 5 mm; *a.* *n*-hexadécane; *b.* *n*-tétradécane; *c.* *n*-heptane; *d.* *n*-hexane.
B. Examen des bandes dédoublées 5 800 et 8 260 cm^{-1}.

il s'agit d'un doublet dont le centre de gravité suit le mouvement indiqué (pour l'harmonique 2ν, voir *fig.* 5 *a*). Ainsi, pour l'hexane (*n*), la bande CH_2, indiquée par Liddel et Kasper [24] vers 5790 cm^{-1}, se dédouble en une composante intense à 5800 cm^{-1} et en un point d'inflexion non douteux à 5780 cm^{-1}. Pour l'hexadécane, les intensités sont inversées. Le même phénomène a lieu pour l'harmonique 3ν avec le doublet 8250-8275 cm^{-1}. Pour mettre ce phénomène en évidence, l'épaisseur de la cuve est très importante : 1 mm à 1,7 μ et 5 mm à 1,2 μ. En opérant respectivement avec 2 et 10 mm, l'élargissement des raies ne permet plus de voir le dédoublement. Pour les harmoniques supérieurs, comme pour le déplacement de l'autre vibration CH_2 (beaucoup plus faible, de 5672 cm^{-1} avec l'hexane à à 5667 cm^{-1} pour l'hexadécane), le spectrographe utilisé n'était pas assez dispersif pour obtenir les composantes.

Il semble que les groupements CH_3 terminaux influencent les groupements CH_2 voisins et augmentent leur fréquence de vibration. L'action de CH_3 s'étendrait à quelques CH_2, soit par action directe, soit par battement, du second CH_2 avec le premier. Pour le décane (*fig.* 5 *b*), il y aurait quatre groupements CH_2 vibrant à la fréquence basse et quatre vibrant à la fréquence élevée, ce qui indiquerait que chaque CH_3 affecterait la vibration des deux groupements CH_3 voisins. Nos résultats confirment le travail de Francis [9] sur la détermination de

l'intensité absolue des bandes CH, CH_2, CH_3, interprétée comme un mélange de bandes n'ayant pas d'interaction, au moins en première approximation.

Dans une molécule à chaîne ramifiée relativement courte, avec moins de dix atomes de carbone, il est facile de prévoir que le doublet considéré ci-dessus sera inexistant et que subsistera seule la vibration CH_2 affectée par CH_3, c'est-à-dire les composantes 5800 et 8275 cm^{-1}.

2. Bandes de combinaison. — Les régions de moindre absorption, qui se trouvent entre les harmoniques successifs et qui se laissent décomposer en des maxima plus ou moins nombreux (si l'on utilise une technique correcte) ainsi que l'ont montré précédemment plusieurs auteurs, comme Yéou Ta [31] et Freymann [11], [12] *s'interprètent par la combinaison des fréquences harmoniques avec les fréquences d'oscillation fondamentales beaucoup plus basses. Entre deux harmoniques successifs, on doit retouver la totalité du spectre d'absorption*, depuis l'infrarouge moyen jusqu'à l'infrarouge de très grande longueur d'onde : il est représenté par des bandes dont les nombres d'ondes sont simplement augmentés du nombre d'ondes de l'harmonique considéré, remplissant l'office d'onde porteuse.

La difficulté vient, dans notre cas, de ce que les combinaisons des fréquences fondamentales avec la composante la plus intense d'un harmonique ne peuvent expliquer tout le spectre observé. D'autre part, comme on le constate facilement, certaines bandes du spectre de combinaison peuvent résulter de deux ou trois combinaisons théoriques possibles avec différentes composantes de l'harmonique. Aussi, pour éviter une part d'arbitraire complètement inadmissible dans le choix des combinaisons, et pour essayer de débrouiller l'ensemble extrêmement touffu des spectres, *nous avons admis que des spectres analogues devaient s'expliquer de la même manière.*

Ainsi, l'hexane et l'heptane révèlent des spectres d'aspect général semblable et des structures assez rapprochées l'une de l'autre. Ils doivent donc logiquement tirer les fréquences de combinaison, qu'ils ont en commun, de la combinaison des mêmes vibrations. Les bandes de l'hexane à 7181 et de l'heptane à 7177 cm^{-1} s'interpréteront par la seule combinaison commune (à l'exclusion des autres combinaisons possibles) 5803 + 1382 et 5905 + 1384 cm^{-1} respectivement. De la même manière, nous associerons le méthyl 2-pentane et le méthyl 3-pentane, le diméthyl 2.3-pentane et le diméthyl 2.4-pentane. La considération des spectres par groupe d'isomères aurait été stérile.

En adoptant le fil directeur indiqué, on aboutit aux tableaux de combinaisons suivants; tant pour les régions 6400-7400 que 9300-10000 cm^{-1}, qui utilisent les nombres d'ondes réellement observés dans le spectre plus éloigné du visible.

A. *Région de combinaison* 6 400-7 400 cm^{-1}.

		Hexane.			Heptane.		
CH_2...		6 510 =	5 803 +	726	6 510 =	5 805 +	723
CH_3...		6 710	5 868	861	6 716	5 868	853
CH_2...		6 819	5 803	1 062	6 828	5 805	1 073
CH_2...		6 913	5 803	1 139	6 903	5 805	1 139
CH_2...		6 982	5 803	1 223	6 973	5 805	1 205
CH_2...		7 080	5 803	1 297	7 067	5 805	1 303
CH_2...		7 181	5 803	1 382	7 177	5 805	1 384
CH_2...		7 240	5 803	1 466	7 215	5 805	1 461
CH_3...		7 349	5 908	1 466	7 342	5 910	1 461

		Méthyl 2-pentane.			Méthyl 3-pentane.		
CH_2...		6 460 =	5 651 +	816	6 458 =	5 661 +	813
CH_2...		6 585	5 806	816	6 592	5 815	813
CH_3...			5 868	738		5 877	747
CH....	*a*	6 709	5 759	955*	6 701	5 770	953
CH_3...	*b*	6 816	5 868	955	6 808	5 877	953
CH....		6 915	5 759	1 163	6 912	5 770	1 143
CH_3...	*c*		5 868	1 064		5 877	1 041
CH_3...		6 976	5 868	1 163	6 980	5 877	1 143
CH_2...	*d*	7 080	5 651	1 469	7 080	5 661	1 462
CH....		7 130	5 759	1 381	7 117	5 770	1 378
CH_2...	*e*	7 169	5 806	1 381	7 179	5 815	1 378
CH_3...		7 234	5 868	1 381	7 220	5 877	1 378
CH_3...	*f*	7 349	5 902	1 469	7 338	5 910	1 462

		Diméthyl 2.3-pentane.			Diméthyl 2.4-pentane.		
CH....	*a*	6 702 =	5 760 +	960	6 701 =	5 748 +	985
CH_2...			5 815	914		5 800	919
CH_3...			5 875	847		5 862	868
CH_3...	*b*	6 816	5 875	960	6 814	5 862	985
CH_3...	*c*	6 913	5 875	1 062	6 913	5 862	1 075
CH_2...		6 973	5 652	1 381	6 961	5 645	1 368
CH_2...	*d*	7 080	5 652	1 457	7 067	5 645	1 459
CH_2...	*e*	7 184	5 815	1 381	7 160	5 800	1 368
CH_2...		7 230	5 815	1 457	7 224	5 800	1 459
CH_3...	*f*	7 343	5 905	1 457	7 345	5 897	1 459

		Triméthyl 2.2.4-pentane.		
CH_2...		6 594 =	5 800 +	823
CH_3...			5 860	743
CH....	*a*	6 694	5 746	978
CH_2...			5 800	925
CH_3...	*b*	6 801	5 860	978
CH_2...	*d*	7 062	5 618	1 471
CH_2...	*e*	7 159	5 800	1 385
CH_3...		7 228	5 860	1 385
CH_3...	*f*	7 307	5 894	1 471

Noter la parenté des spectres de combinaison entre les dérivés di et trisubstitués du pentane, signalée par les lettres en regard de quelques bandes.

B. *Région de combinaison* 9 300-10 000 cm^{-1}.

	Hexane.			Heptane.		
CH_2...	9 298 =	8 269 +	1 062	9 296 =	8 256 +	1 073
CH_3...	9 488	8 380	1 139	9 481	8 373	1 138
CH_2...	9 622	8 269	1 382	9 636	8 256	1 384
CH_2...	9 712	8 269	1 466	9 700	8 256	1 461
CH_3...	9 818	8 380	1 466	9 809	8 373	1 461

	Méthyl 2-pentane.			Méthyl 3-pentane.		
CH_3...	9 464 =	8 684 +	816	9 458 =	8 685 +	813
CH_3...	9 578	8 477	1 143	9 595	8 485	1 143
CH_3...	9 704	8 371	1 381	9 737	8 390	1 378
CH_3...	9 804	8 371	1 469	9 818	8 390	1 462

	Diméthyl 2.3-pentane.			Diméthyl 2.4-pentane.		
CH_3...	9 339 =	8 373 +	991	9 346 =	8 380 +	985
CH_3...	9 578	8 678	914	9 572	8 679	919
CH_3...	9 697	8 373	1 372	9 705	8 380	1 356
CH_3...	9 816	8 373	1 457	9 810	8 380	1 459
CH_3...	9 866	8 472	1 457	9 869	8 473	1 459
CH_3...	9 962	8 678	1 372	9 975	8 679	1 356
CH_3...	10 056	8 678	1 457	10 079	8 679	1 459

On peut remarquer, en passant que, la composante CH_3 la plus intense de l'harmonique 2 ν, vers 5860 cm^{-1}, ne se combine, dans aucun spectre, avec la fréquence fondamentale de déformation vers 1460 cm^{-1}. Au contraire, pour l'harmonique suivant 3 ν, la composante CH_3 vers 8380 cm^{-1} se combine, pour tous les hydrocarbures étudiés, avec 1460 cm^{-1}.

Quelques bandes, 4 à 5, pour chaque hydrocarbure, le caractérisent en propre, et n'apparaissent pas dans les spectres des hydrocarbures voisins et de même structure, pris comme termes de comparaison. Nous les donnons ci-après :

Hexane.			Heptane.		
6 580 =	5 868 +	722	6 605 =	5 672 +	954
6 658	5 803	888	6 885	5 868	1 022
6 767	5 908	888			
7 125	5 672	1 466			

Méthyl 2-pentane.			Méthyl 3-pentane.		
6 531 =	5 806 +	738	6 655 =	5 910 +	767
6 801	5 651	1 163	6 714	5 770	987
			7 027	5 661	1 378

Diméthyl 2.3-pentane.			Diméthyl 2.4-pentane.		
6 475 =	5 652 +	851	6 530 =	5 748 +	809
6 636	5 652	991	6 589	5 800	809
6 761	5 652	1 121			
	5 815	960			
7 128	5 760	1 381			

Triméthyl 2.2.4-pentane.		
6 416 =	5 618 +	823
6 761	5 800	978
6 835	5 860	978
6 955	5 618	1 374

L'analyse du spectre de combinaison dans la région 6100-6400 cm^{-1}, *permet de mettre en évidence des fréquences de vibration basses,* qui ont pu être observées au moyen de l'effet Raman, mais dont la mesure directe par absorption reste encore difficile. En employant la même méthode de sélection que précédemment, nous trouvons ainsi les nombres d'ondes suivants :

Hexane.			Heptane.		
6 125 =	5 803 +	332	6 157 =	5 808 +	355
6 164	5 803	368	6 214	5 868	355
6 256	5 868	400	6 317	5 868	449
6 345	5 908	449			

Région 1,3-1,7 µ.	Région 0,9-1,2 µ.

Méthyl 2-pentane :

6 326 — 5 868 = 458	8 822 — 8 371 = 451
6 377 — 5 868 = 509	8 892 — 8 371 = 521

Fréquences basses données par l'effet Raman (25) :

322, 381, 395, 446 cm^{-1}.

Méthyl 3-pentane :

6 142 — 5 877 = 265	8 851 — 8 390 = 461
6 241 — 5 877 = 364	8 900 — 8 390 = 510
6 300 — 5 877 = 423	8 951 — 8 390 = 561
6 343 — 5 877 = 466	

Fréquences basses données par l'effet Raman (25) :

387, 445, 470 cm^{-1}.

Diméthyl 2.3-pentane :

6 146 — 5 875 = 271	8 846 — 8 373 = 473
6 240 — 5 875 = 365	8 893 — 8 373 = 520
6 352 — 5 875 = 477	

Fréquences basses données par l'effet Raman (25).

352, 380, 431, 462, 481, 498, 552 cm^{-1}.

Diméthyl 2.4-pentane :

6 157 — 5 862 = 295	8 848 — 8 380 = 468
6 327 — 5 862 = 465	8 892 — 8 380 = 512

Fréquences basses données par l'effet Raman (25).

137, 308, 336, 353, 380, 419, 469, 497 cm^{-1}.

Triméthyl 2.2.4-pentane :

6 177 — 5 860 = 317	8 871 — 8 363 = 508
6 212 — 5 860 = 352	8 898 — 8 363 = 535
6 277 — 5 860 = 417	

Fréquences basses données par l'effet Raman (22).

150, 302, 426, 514 cm^{-1}.

Triméthyl 2.2.5-hexane :

6 174 — 5 864 = 310	8 846 — 8 365 = 471
6 200 — 5 864 = 336	8 892 — 8 365 = 527
6 293 — 5 864 = 429	8 958 — 8 365 = 593
6 342 — 5 864 = 478	

Nous ne connaissons pas le spectre Raman du triméthyl 2.2.5-hexane.

(La bibliographie se trouve à la fin de la 2e partie.)

Manuscrit reçu le 24 juillet 1952.

SPECTROMÈTRE β A CHAMP MAGNÉTIQUE UNIFORME

Par Pierre BRETONNEAU et Jean MOREAU.
Commissariat à l'Énergie atomique, Saclay.

Sommaire. — Exposé de la théorie de la focalisation en champ uniforme pour une source ponctuelle. Discussion de la théorie pour une source étendue. Description du spectromètre. Résultats des expériences relatives à l'étalonnage et au pouvoir séparateur.

Introduction. — L'étude précise des rayonnements peu intenses des radioéléments naturels et artificiels a exigé la réalisation de spectromètres de grande luminosité et de bon pouvoir séparateur.

Le spectromètre que nous avons réalisé au laboratoire du Service de Physique Nucléaire du Commissariat à l'Énergie atomique est du type à trajectoire hélicoïdale dans un champ magnétique uniforme. Nous allons montrer que ce type d'appareil permet d'obtenir une grande luminosité et cependant qu'il conserve les avantages des spectromètres semi-circulaires : bon pouvoir séparateur et mise au point facile.

1. Théorie de la focalisation en champ uniforme.

— Pour obtenir des spectres β qui ne présentent pas de distorsion, il est nécessaire que les particules β ne perdent pas une partie de leur énergie dans la source elle-même; la source devra donc avoir une masse superficielle très faible. Pour étudier les radioisotopes dont l'activité spécifique est faible, il faudra réaliser des sources étendues; pour cette raison, les caractéristiques de la focalisation devront être étudiées pour une source étendue, mais nous allons d'abord étudier le cas simple de la focalisation pour une source ponctuelle.

A. Source ponctuelle. — Soit un point source émetteur isotrope de particules chargées, dans un champ magnétique uniforme les particules suivront des trajectoires hélicoïdales.

En coordonnées cylindriques, l'équation d'une trajectoire sera

$$\left.\begin{aligned} r &= D \sin\alpha \sin\Psi, \\ \Psi &= \frac{Z}{D\cos\alpha}. \end{aligned}\right\} \qquad (1)$$

Coordonnées r, Z, Ψ; l'axe des Z est parallèle au champ magnétique;

$D = \frac{2p}{eH}$ a une signification physique : c'est le diamètre du cercle que décrit la particule dans un plan perpendiculaire au champ magnétique;

p, quantité de mouvement relativiste de la particule

$$p = \frac{m_0 v}{\sqrt{1-\frac{v^2}{c^2}}};$$

e, charge de la particule;

H, valeur du champ magnétique;

α, angle entre la direction d'émission de la particule et le champ au point source.

La forme de la trajectoire dans un plan méridien contenant la particule est une sinusoïde d'amplitude $D \sin\alpha$ et dont l'abscisse du premier maximum est égale à $\frac{\pi D \cos\alpha}{2}$.

Sur la figure 1 nous avons représenté trois sinusoïdes relatives à des trajectoires correspondant aux angles d'émission $\alpha - \varepsilon$, α et $\alpha + \varepsilon$.

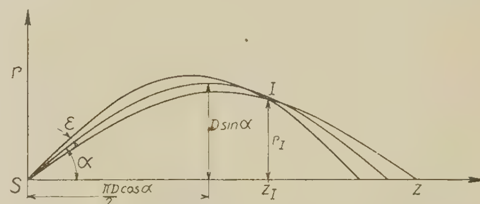


Fig. 1. — Trajectoire et focalisation annulaire. (Représentation dans un plan méridien.)

Il existe un plan perpendiculaire à l'axe des Z pour lequel $\frac{\partial r}{\partial \alpha} = 0$. Soit Z_I l'abscisse de ce plan qui est déterminée par les équations suivantes :

$$\left.\begin{aligned} \frac{\operatorname{tg}\Psi_I}{\Psi_I} &= -\operatorname{tg}^2\alpha, \\ \frac{Z_I}{D\cos\alpha} &= \Psi_I, \\ r_I &= D\sin\alpha\sin\Psi_I. \end{aligned}\right\} \qquad (2)$$

Le faisceau de trajectoires dont les directions initiales sont comprises entre $\alpha - \varepsilon$ et $\alpha + \varepsilon$ aura donc en I une épaisseur minimum que nous calculerons par la formule de Taylor en nous limitant au second ordre

$$\Delta r_a = \frac{1}{2}\left(\frac{\partial^2 r}{\partial \alpha^2}\right)_I \varepsilon^2 = \frac{1}{2}\,\frac{D\sin\Psi}{\sin\alpha}\left(3 + \frac{Z^2}{D^2}\operatorname{tg}^4\alpha\right)\varepsilon^2. \quad (3)$$

Cet anneau de moindre épaisseur sera appelé anneau de focalisation. Nous avons représenté sur la figure 2 $\frac{Z_I}{D}$, qui donne l'abscisse du plan de l'anneau

de focalisation en fonction de l'angle α d'émission.

Lorsque α varie, l'anneau de focalisation engendre la surface caustique, dont nous avons représenté (*fig.* 3) la section par un plan méridien.

r_1 et Z_1 sont tous les deux proportionnels à $D = \frac{2p}{eH}$; si l'on a la surface caustique relative à une particule de quantité de mouvement p, on obtiendra la

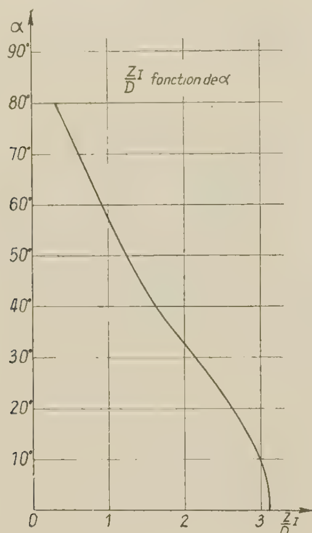


Fig. 2. — $\frac{Z_1}{D}$, fonction de α.

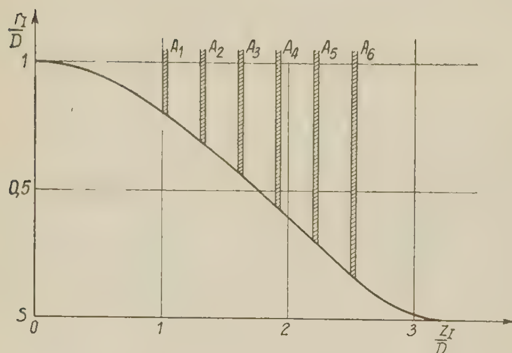


Fig. 3. — $\frac{r_1}{D}$ en fonction de $\frac{Z_1}{D}$.

surface caustique relative à une particule de quantité de mouvement p' en faisant une homothétie par rapport au point source de rapport $\frac{p'}{p} = \frac{D'}{D}$.

Toutes les trajectoires de particules de quantité de mouvement p sont tangentes à une surface caustique, les trajectoires de particules de quantité de mouvement $p' > p$ couperont donc cette surface caustique; si nous plaçons une infinité de diaphragmes (type A_i, *fig.* 3) sur l'extérieur de la surface caustique, les particules de quantité de mouvement $p' > p$ heurteront un de ces diaphragmes.

Il apparaît donc la possibilité physique d'arrêter toutes les particules de quantité de mouvement $p' > p$ et cela quel que soit leur angle d'émission, c'est-à-dire aussi avec un récepteur convenable de compter toutes les particules de quantité de mouvement comprise entre zéro et p et dont la direction d'émission serait comprise dans un angle solide égal à 2π stéradians (pour $0 < \alpha < 90°$).

Cette propriété est assez difficile à utiliser, car il faudrait un récepteur de grandes dimensions et, d'autre part, il faudrait différencier la courbe des taux de comptage pour obtenir le spectre β.

Pour avoir directement le spectre β, nous allons chercher à ne recevoir sur le récepteur que les particules dont les quantités de mouvement seront comprises entre $p - \Delta p$ et p.

La trajectoire de la particule de quantité de mouvement $p - \Delta p$ coupera le plan d'abscisse Z à une distance $r - \Delta r$. En nous limitant au premier terme du développement,

$$\left.\begin{aligned} \Delta r &= \frac{\partial r}{\partial D}\Delta D, \\ \Delta r &= \frac{\sin\Psi}{\sin\alpha}\Delta D, \\ \Delta D &= \frac{2\Delta p}{eH}. \end{aligned}\right\} \quad (4)$$

Dans le plan Z, nous placerons un diaphragme intérieur de rayon $r - \Delta r_a$; des équations (3) et (4) on obtient la relation suivante entre ΔD et ε :

$$\Delta r = \Delta r_a, \qquad \frac{\partial r}{\partial D}\Delta D = \frac{1}{2}\,\frac{\partial^2 r}{\partial \alpha^2}\,\varepsilon^2. \quad (5)$$

Soit

$$\frac{\sin\Psi}{\sin\alpha}\Delta D = \frac{1}{2}\,\frac{D\sin\Psi}{\sin\alpha}\left(3 + \frac{Z^2}{D^2}\,\mathrm{tg}^4\alpha\right)\varepsilon^2.$$

Les particules dont les directions d'émission seront dans l'angle solide $4\pi\varepsilon\sin\alpha$, passeront par l'anneau de focalisation et atteindront le récepteur. On adopte, en général, pour expression de la luminosité ω le rapport de l'angle solide $4\pi\varepsilon\sin\alpha$ à l'angle solide total 4π.

$$\omega = \varepsilon\sin\alpha. \quad (6)$$

On définit le pouvoir séparateur η par le rapport $\frac{\Delta p}{p}$

$$\eta = \frac{\Delta p}{p} = \frac{\Delta D}{D};$$

d'après les équations (5), on obtient ω en fonction de η

$$\left.\begin{aligned} \omega &= \sin\alpha\sqrt{\frac{2}{3 + \frac{Z^2}{D^2}\,\mathrm{tg}^4\alpha}}\sqrt{\eta}, \\ \omega &= f(\alpha)\,\eta^{\frac{1}{2}}. \end{aligned}\right\} \quad (7)$$

A un pouvoir séparateur η donné, la luminosité ω doit être maximum. Le maximum de $f(\alpha)$ est

obtenu pour $\alpha = 45°37'$. C'est l'angle optimum pour le cas de la source ponctuelle.

Sur la figure 4, nous avons représenté la luminosité ω en fonction du pouvoir séparateur η.

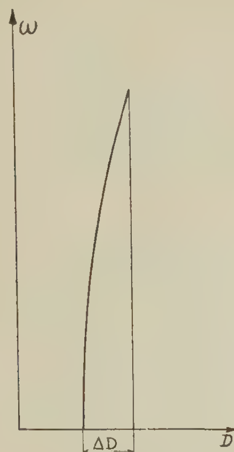


Fig. 4. — Courbe de résolution théorique pour un point source.

B. Source étendue. — Nous admettons que l'intensité d'émission est constante, quel que soit le point de la source considérée; nous admettons aussi que l'émission est isotrope.

Toutes les particules dont la direction d'émission est comprise entre α et $\alpha + d\alpha$ ne parviendront pas au récepteur, seules les particules parties d'une aire S' passeront les diaphragmes. Nous définissons pour la source étendue une luminosité Ω par l'intégrale suivante :

$$\Omega = \int_{\alpha-\varepsilon}^{\alpha+\varepsilon} \frac{\sin\alpha}{2} g(\alpha S)\, d\alpha,$$

où $g(\alpha, S) = \frac{S'}{S}$; S' est une fonction de α.

Le rapport $\frac{\Omega}{\omega}$ est, en général, inférieur à 1.

Le calcul de Ω peut se faire par intégration graphique, mais il faut choisir le rayon a de la source et le demi-angle d'ouverture ε; nous avons fait le calcul pour plusieurs valeurs de α. Voici les résultats pour

$$\alpha = 29°30', \qquad \varepsilon = 2°30'.$$

Ce sont les valeurs actuellement employées.

Nous trouvons pour différents diamètres de source les valeurs suivantes pour ω et Ω :

$a = 0$, $\omega = 2{,}2$ pour 100;

$a = \frac{1}{4}\Delta r_a$, $\Omega = 2{,}2$ pour 100;

$a = \Delta r_a$; $\Omega = 1{,}3$ pour 100.

Δr_a épaisseur de l'ouverture annulaire définie par les rayons r_1, r_2, extérieur et intérieur des diaphragmes de focalisation.

Le nombre de particules atteignant le récepteur est proportionnel à Ω et à la surface de la source πa^2, soit L défini par l'équation suivante :

$$L = \pi a^2 \Omega.$$

Il faut obtenir L maximum pour un pouvoir séparateur η donné. E. Persico [1] admet que Ω ne dépend pas du rayon de la source et qu'il est seulement proportionnel à $\varepsilon \sin\alpha$; il trouve $a = 2\,\Delta r_a$ et $\alpha = 40°25'$. L est alors proportionnel à $\eta^{\frac{5}{2}}$.

Nous avons fait le calcul par intégration graphique pour $a = \Delta r_a$ et nous trouvons un angle α optimum d'environ 42°.

Cependant L fonction de α a une dérivée seconde assez faible au voisinage du maximum; il est donc possible, sans diminuer considérablement L, d'utiliser un angle plus faible; il est, en effet, plus économique d'utiliser un solénoïde de rapport diamètre sur longueur plus petit, les dispositifs employés pour maintenir le champ uniforme aux extrémités exigeant dans ce cas une partie plus faible de l'énergie totale.

Pour cette raison, nous avons choisi un angle moyen d'ouverture de 29° 30' inférieur à l'angle optimum.

E. Persico [2] signale que J. W. M. Dumond construit un spectromètre dont l'angle moyen d'ouverture serait voisin de 40°.

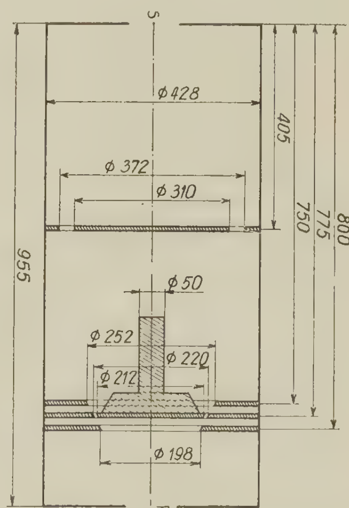


Fig. 5. — Positions et cotes des diaphragmes.

2. **Description de l'appareil**. — Le spectromètre se compose de trois parties essentielles : le solénoïde créant le champ magnétique nécessaire à la focalisation des particules, la chambre du spectromètre dans laquelle les particules décrivent leurs trajectoires et, enfin, le récepteur qui les

détecte. Les matériaux entrant dans la construction de toutes ces pièces (laiton, duralumin) ont une susceptibilité magnétique inférieure à 10^{-4}. Nous avons pris cette précaution pour obtenir un champ uniforme et conserver sa proportionnalité à l'intensité.

A. Le solénoïde. — Le champ magnétique uniforme est créé par un solénoïde; le support de la bobine est un cylindre de laiton de 1600 mm de long et 500 mm de diamètre réalisé à l'aide d'une planche de laiton roulée, puis soudée suivant une génératrice; deux flasques carrées sont soudées aux deux extrémités de ce cylindre, sur ces flasques est fixé le support mobile de tout l'appareil.

Sur ce cylindre on a enroulé cinq couches de 152 spires chacune, le conducteur est un tube de cuivre rouge de section carrée de 10 mm de côté extérieur et de 8 mm de côté intérieur.

Des bobines de correction de 50 spires faites du même conducteur ont été placées aux extrémités pour assurer l'uniformité du champ sur l'ensemble de la trajectoire.

Nous avons utilisé, pour réaliser le bobinage, du tube à section carrée, car il permet de diminuer le coefficient de foisonnement.

Le poids total de cuivre utilisé est de 600 kg; la longueur totale de l'enroulement est de 1400 m.

Les cinq couches du conducteur du bobinage principal et des bobines de correction sont montées en série, la résistance totale est de 0,55 Ω. Le bobinage est alimenté par un groupe convertisseur pouvant fournir 200 A sous 100 V. On fait varier l'intensité du courant en faisant varier la tension aux bornes de la dynamo en agissant sur l'excitatrice. Le champ peut ainsi varier de 0 à 1200 Oe.

La composante horizontale est uniforme à mieux de 1 pour 100 sur une trajectoire moyenne; cette uniformité a été contrôlée avec une bobine exploratrice montée en opposition avec une bobine fixe placée à la position de la source; de cette façon, on a pu déterminer la position convenable à donner aux bobines de correction : elles doivent être placées à 150 mm des extrémités de la bobine principale.

Le refroidissement de la bobine est assuré par une circulation d'eau sous pression à travers le conducteur; les cinq couches du bobinage principal et des bobines correctrices sont montées en parallèle afin d'assurer un débit suffisant : la pression est de 4 kg/cm². Le circuit de refroidissement comprend une pompe centrifuge, un échangeur et un réservoir. Ce dispositif permet de n'avoir qu'une augmentation moyenne de température de 10° du cuivre pour une puissance fournie de 15 kW. Une charpente métallique en duralumin maintient le solénoïde à l'aide de deux tourillons sur un affût également en duralumin. Ceci permet d'amener l'axe du spectromètre dans la direction du champ magnétique terrestre.

B. La chambre du spectromètre. — La chambre du spectromètre est un cylindre de laiton de 955 mm et de 428 mm de diamètre, fermé par deux flasques et introduit à l'intérieur du solénoïde. Les axes

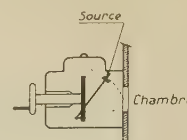


Fig. 6. — Sas et porte-source.

mécaniques de la chambre et du solénoïde ont entre eux un faux parallélisme de 17/100e de millimètre sur toute la longueur de ce dernier. Le vide dans la chambre est réalisé par une pompe à palette (C. G. R., type B. L. 14) et une pompe secondaire à diffusion d'huile (type C. E. A., débit 100 l/s). Ce dispositif permet de maintenir un vide dynamique de quelques 10^{-5} mm de mercure.

A l'intérieur de la chambre, un dispositif mécanique supporte les diaphragmes et une masse de plomb protège le récepteur du rayonnement γ direct de la source; un système de quatre diaphragmes de sélection peut aussi être fixé. Les diaphragmes sont des disques en duralumin de 10 mm d'épaisseur, leurs diamètres sont donnés sur la figure 5.

Sur l'une des flasques de la chambre est fixé un sas qui permet d'introduire la source en maintenant le vide dans la chambre.

C. Le récepteur. — A l'autre extrémité de la chambre se trouve le récepteur. C'est un compteur Geiger-Müller dont la fenêtre d'entrée est située dans le plan image de la source. C'est un compteur

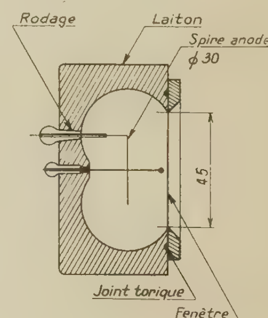


Fig. 7. — Compteur.

de forme torique. L'anode est une spire de fil de tungstène de 1/10e de millimètre de diamètre. La fenêtre d'entrée, d'un diamètre de 45 mm, est constituée par une feuille de formvar de 0,2 mg/cm², soutenue par une grille métallique de 4 mm de maille. La pente du compteur est de 5 pour 100 et son mouvement propre en l'absence de source est de 22 coups/mn; la tension est fournie au compteur par une haute tension stabilisée (type C. E. A.).

Le comptage se fait sur une échelle de 100 (type C. E. A.).

3. **Étalonnage. Résolution.** — Les positions et les cotes des diaphragmes de la figure 5 sont calculées pour une valeur de D égale à 360 mm. D est une constante de l'appareil, nous ne modifions pas la position des diaphragmes; pour obtenir la focalisation de β de quantités de mouvement variant de zéro à p, il suffit de faire varier le champ magnétique de zéro à $H = \frac{eD}{2p}$.

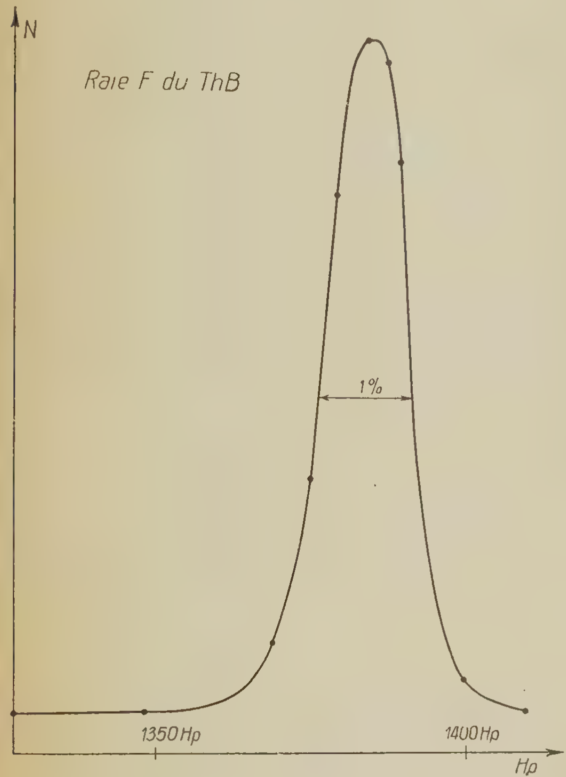


Fig. 8. — Raie F du Th B.

Pour connaître la quantité de mouvement p, il faut déterminer H, mais il faut aussi supposer que le champ est rigoureusement uniforme; cette mesure absolue de la quantité de mouvement a déjà été faite pour certaines raies de conversion interne et en utilisant des spectromètres semi-circulaires.

Pour un spectromètre à solénoïde, cette détermination absolue serait trop peu précise, nous avons préféré utiliser pour l'étalonnage la raie F du thorium B dont l'énergie a été déjà déterminée avec soin.

La raie F du thorium B est une raie monocinétique d'électrons de conversion interne; en faisant varier le champ magnétique, nous obtenons la courbe de résolution.

Le pouvoir séparateur trouvé correspond à la valeur calculée, ce qui prouve que l'anneau de focalisation se trouve bien à la position prévue.

Nous avons étudié quelques raies de la chaîne

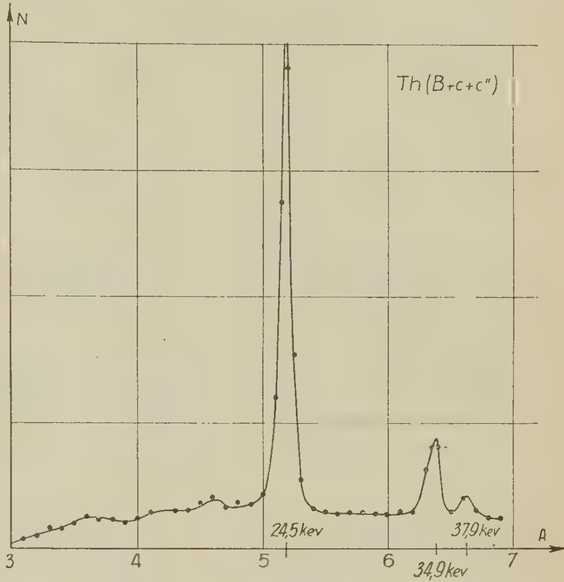


Fig. 9. — Raies du Th ($B + C + C''$).

thorium ($B + C + C''$) à basse énergie et nous trouvons un pouvoir séparateur identique. Il semble donc que le vide soit suffisamment bon, même pour des raies de faible énergie (24,5 keV).

Nous avons étudié également les raies de conversion interne du γ de l'or dont l'énergie est bien déterminée (Dumond). Nous trouvons, en admettant

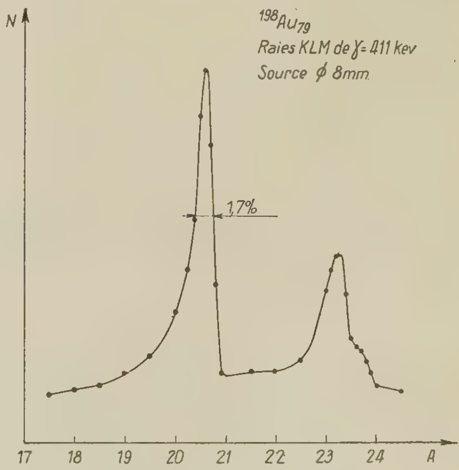


Fig. 10. — ^{198}Au; Raies K, L, M de γ : 411 keV.

l'étalonnage correct sur la raie F du thorium B, 412 ± 1 keV. La valeur donnée par Dumond est 411,2 keV. C'est une confirmation de la proportionnalité du champ magnétique à l'intensité.

En étudiant les spectres β, nous avons vu appa-

raître une distorsion aux basses énergies, elle était due à deux causes principales; le sas représenté dans la figure 6 possédait des masses métalliques qui n'étaient pas assez éloignées de la source et provoquaient une rétrodiffusion assez intense. Nous avons diminué cette cause de distorsion en plaçant des écrans de plexiglass moins diffusants; l'autre cause de distorsion était due à une réflexion sur les parois latérales de la chambre et au voisinage de la source, cette seconde cause fut fortement diminuée en plaçant près de la source des diaphragmes annulaires.

Nous avons pu faire, après ces modifications, une étude correcte des formes de spectre β, les premiers résultats ont déjà fait l'objet d'une publication [8].

Conclusion. — Pour terminer, nous donnons quelques valeurs de comparaison avec certains spectromètres récents.

Voici la signification des expressions figurant dans le tableau :

E_{max}, énergie maximum des particules pouvant être focalisées;

l, distance source récepteur;

η', pouvoir séparateur défini par $\frac{\Delta p'}{p}$. C'est la largeur relative de la courbe de résolution à mi-hauteur. Dans la première partie, nous avons utilisé $\eta = \frac{\Delta p}{p}$ qui est la largeur relative à la base : $\eta' = \frac{3}{4}\eta$ pour une source ponctuelle;

ω, luminosité;

$2a$, diamètre de la source;

$L = \pi a^2 \Omega$, produit de la surface de la source par la luminosité réelle;

$\Psi = \eta^{-\frac{1}{2}}\omega$, nous calculons cette expression pour comparer les spectromètres à pouvoir séparateur égal. Nous avons montré que, pour une source ponctuelle, la luminosité a la forme $\omega = \Psi\eta^{\frac{1}{2}}$. Ψ ne dépend pas de l'ouverture et caractérise bien le spectromètre. Cette expression n'a un sens que pour la source ponctuelle;

$\Phi = \frac{\eta^{-\frac{3}{2}} L}{l^2}$, cette expression a été calculée dans le même but de comparaison que Ψ, mais elle est valable pour une source étendue et en admettant l'hypothèse de Persico.

TABLEAU I.

Auteur.	Référence.	Type.	Énergie maximum (MeV).	l (cm).	η' (pour 100).	ω (pour 100).	$2a$ (mm).	$L.10^{3}$ (cm²).	$\Phi.10^4$.	$\Psi.10^2$.
Haggstrom	[3]	Sol	4,44	90	2,5	2	5	4	50	12,5
Deutsch-Elliot-Evans	[4]	Lent, mince	3,5	100	1,7	0,18	4	0,22	5,8	1,4
Siegbahn	[5]	Lent, épais	4	50	5	2	8	50	72	9
Agnew-Anderson	[6]	Lent, épais	2,8	96	1	1,4	4	1,75	150	–
Feldman-Wu	[7]	Sol	–	34	9	0,31	20	10	35	–
Hubert	[9]	Lent, épais	7,5	58	0,6	1,4	2	0,44	470	–
					3,4	1,95	10	15,3	212	–
Bretonneau-Moreau	–	Sol	5	100	0,8	2,2	0	–	–	25
					1	2,2	2	0,7	70	–
					1,5	1,3	8	6,5	234	–

Nous remercions le Service des Constructions mécaniques du C. E. A., qui a permis la réalisation de ce spectromètre.

Nous remercions particulièrement Monsieur A. Berthelot, qui nous a dirigé dans l'étude et la réalisation de cet appareil.

Manuscrit reçu le 29 août 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] PERSICO E. — *Rev. Sc. Instr.*, 1949, **20**, 191.

[2] PERSICO E. — *Rev. Sc. Instr.*, 1950, **21**, 945.

[3] HAGGSTRÖM. — *Phys. Rev.*, 1942, **62**, 144.

[4] DEUTSCH, ELLIOT et EVANS. — *Rev. Sc. Instr.*, 1944, **15**, 178.

[5] SIEGBAHN K. — *Phil. Mag.*, 1946, **37**, 162.

[6] AGNEW H. M. et ANDERSON H. L. — *Rev. Sc. Instr.*, 1949, **20**, 869.

[7] FELDMAN L. et WU C. S. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 180.

[8] MOREAU J. et PEREZ Y JORBA J. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **235**, 38.

[9] HUBERT P. — *J. Physique Rad.*, 1951, **12**, 763-764; *Thèse*, Paris, 1952.

UNE MÉTHODE PRATIQUE DE CORRECTION DE L'ABERRATION ANGULAIRE EN SPECTROMÉTRIE DE MASSE

Par Ch. CASSIGNOL.
Commissariat à l'Énergie Atomique, Saclay.

Sommaire. — Un spectromètre de masse est décrit, pour lequel la correction de l'aberration angulaire a été réalisée par un procédé empirique inspiré de la méthode de Foucault. Une analyse compare la méthode employée à la méthode de détermination par le calcul.

L'aberration angulaire des spectromètres de masse est un phénomène bien connu auquel une littérature importante a déjà été consacrée [1], [2], etc.

Il a été démontré que ce défaut pouvait, dans les appareils à secteur, être corrigé en profilant de façon adéquate les frontières du champ magnétique. Il existe une infinité de solutions dont certaines ont reçu des applications pratiques. Cependant, celles-ci sont des solutions calculées et la mise au point de l'appareil est délicate, d'autant plus que l'appareil est mieux corrigé. Par ailleurs, le contrôle expérimental des calculs n'est pas possible.

Le travail dont l'exposé suit a été fait d'un point de vue tout différent, qui consiste à faire la correction à partir de la mesure directe du défaut.

Le spectromètre de masse que nous avons construit et sur lequel nous avons réalisé la correction du défaut angulaire répond, en gros, aux caractéristiques suivantes :

Ce n'est pas un secteur à proprement parler, puisque la source est en dehors du champ magnétique, alors que le collecteur est dans le champ magnétique principal. Le rayon de courbure des trajectoires est de 100 mm. La fente source est à 200 mm, comptés sur le rayon moyen, de la frontière du champ. L'angle du rayon moyen avec la frontière au point de rencontre est droit. Les pièces polaires sont polygonales. On peut y rapporter, à l'endroit où le faisceau pénètre, les pièces qui seront profilées par la suite.

Nous avons réalisé une source expérimentale à faisceau franchement divergent, en vue de faire une correction acceptable pour toutes les sources correspondant à des utilisations réelles. Nous avons donc construit une source de Nier, sans demi-plaques et avec l'électrode d'accélération très près (1 mm) de la chambre d'ionisation. Nous nous sommes assurés que le chromatisme introduit par cette géométrie était négligeable. La demi-ouverture du faisceau atteignait 5° environ. L'alimentation de la source est celle qui nous a déjà servi à équiper un spectromètre de masse à balayage électrostatique. La tension d'accélération des ions est la somme d'une partie constante dans le temps et d'une partie en dents de scie. Ces deux tensions sont séparément ajustables. Le signal reçu par le collecteur, convenablement amplifié, est envoyé sur les plaques verticales d'un tube oscilloscopique. Les plaques horizontales sont attaquées par une tension en dents de scie synchrone de la précédente, mais d'amplitude constante. La fréquence de récurrence est de 100 c/s. On a, sur l'écran de l'oscilloscope, un spectre de masse dont on peut à volonté faire varier le point moyen et l'étalement.

A quelque distance en avant de la fente-source se trouve un écran métallique relié électriquement à la paroi. Cet écran porte une fente fine parallèle aux lignes de champ magnétique (horizontale) et l'on peut lui donner des déplacements verticaux à l'aide d'une tige qui passe dans un presse-étoupe. On peut, à l'aide de cet écran, isoler des pinceaux déliés d'ions dans le faisceau à large ouverture sans perturber leurs trajectoires.

Nous cherchons à déterminer les profils des pièces polaires qui assurent, la source fonctionnant à pleine ouverture, la meilleure définition. Les pièces rapportées sont au début d'une expérience des parallélépipèdes rectangles et nous nous proposons de leur apporter des retouches jusqu'à ce que ce résultat soit atteint. Dans ce but, il convient d'opérer de façon systématique.

A pleine ouverture, l'aspect d'un spectre au début d'une expérience est peu engageant. Si l'on isole un pinceau, l'aspect du spectre devient meilleur, mais les signaux se déplacent quand on déplace l'écran, tant que la correction n'est pas faite. L'opération comprend quatre parties :

a. Mise en place de l'aimant pour le rayon moyen. Nous entendons par rayon moyen celui qui se propage dans l'axe géométrique de la source; il est horizontal;

b. Mesure du défaut angulaire en plusieurs points;

c. Correction de ce défaut;

d. Contrôle de la correction.

a. On doit amener l'aimant en place pour le

rayon moyen. Pour ce faire, on isole ce dernier avec l'écran à fente, et l'on déplace l'aimant jusqu'à ce que le spectre ne bouge plus quand on donne à l'écran de petits déplacements. Ceci étant obtenu, on ne touche plus l'aimant.

b. On place la fente dans des positions connues et l'on compense le déplacement du spectre par une variation de la partie fixe de la tension d'accélération. On calcule ainsi la variation du rayon de courbure des trajectoires et, par une construction géométrique, la retouche à apporter au profil au point considéré (on aurait pu penser faire cette compensation par déplacement de l'aimant, ce qui aurait donné une correction plus directe, mais dans l'appareil que nous avons expérimenté, l'aimant est lourd et difficile à déplacer).

c. et *d*. La correction étant ainsi déterminée, on la réalise à la fraiseuse ou à la lime. Pour ne pas risquer de trop enlever de matière, nous nous sommes bien trouvés de ne faire que la moitié de la correction calculée et de recommencer l'opération. On peut faire la deuxième correction avec plus d'audace que la première et le résultat de la troisième expérience est définitif. Quand ce résultat est atteint, la suppression de l'écran à fente n'altère pas les qualités du spectre, mais l'intensité est évidemment multipliée.

Nous avons expérimenté deux autres méthodes de réglage, que nous n'avons pas retenues. Dans l'une d'elles, nous utilisions aussi l'écran, avec cette différence qu'il portait, non plus une, mais deux fentes parallèles et voisines. Sur l'écran oscilloscopique, le spectre était dédoublé et l'on pouvait supprimer le dédoublement en déplaçant l'aimant.

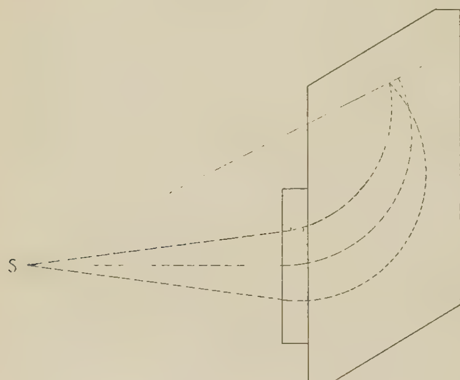


Fig. 1. — Schéma de marche des ions, sans la correction d'aberration angulaire.

L'avantage de cette méthode était de ne pas nécessiter de source de tension stabilisée pour l'accélération des ions, mais les inconvénients se sont révélés supérieurs : ce sont, d'une part, la difficulté de déplacement de l'aimant; d'autre part, une difficulté mathématique de calcul de la correction, qui n'est plus comme dans la première méthode égale au déplacement de l'aimant, mais qui doit

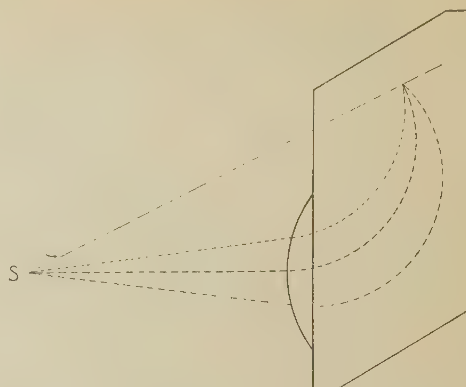


Fig. 2. — Schéma de marche des ions après correction de l'aberration angulaire.

tenir compte de l'angle des pinceaux d'ions avec la frontière du champ magnétique. Dans la dernière méthode, on opérait à pleine ouverture et en deux temps. Tout d'abord, avec les pièces rapportées parallélépipédiques on mettait l'aimant en place pour le rayon moyen; en pratique, on cherchait la position de l'aimant pour laquelle la résolution était la moins mauvaise. Ensuite, on substituait aux pièces parallélépipédiques des pièces dont les profils avaient la forme théorique déterminée par construction graphique (la flèche étant égale à la hauteur des parallélépipèdes) et l'on cherchait le meilleur réglage sans déplacer l'aimant et en faisant glisser ces pièces correctrices sur les pièces principales (voir *fig.* 1 et 2). Le résultat n'a pas été bon, pour deux raisons que nous avons vues par la suite; tout d'abord, l'indicatrice de la source n'est pas symétrique par rapport à son axe géométrique (la mise en place de l'aimant n'est donc pas correcte), ensuite les profils théoriques se sont révélés insuffisants et doivent être un peu plus creusés vers les extrémités (nous attribuons ce fait à la proximité d'un angle vif aux points de raccord des pièces profilées et des pièces principales).

Il aurait été difficile de trouver ce dernier résultat par le calcul et ceci attire notre attention sur une classe de facteurs que nous appelons facteurs accidentels (qui sont, par exemple, l'inhomogénéité du champ magnétique, les aberrations géométriques de la source ou la correction d'entrefer), que notre méthode empirique résout sans difficulté particulière.

Les performances de notre appareil ont été très satisfaisantes. La correction et le réglage ont été faciles à réaliser; la résolution et la luminosité ont dépassé les valeurs escomptées. Il reste à pallier certains défauts de construction : difficulté à déplacer

l'aimant, valeur trop forte de l'entrefer limitant le champ, impossibilité d'étuver. Un nouvel appareil est actuellement en construction dans lequel ces

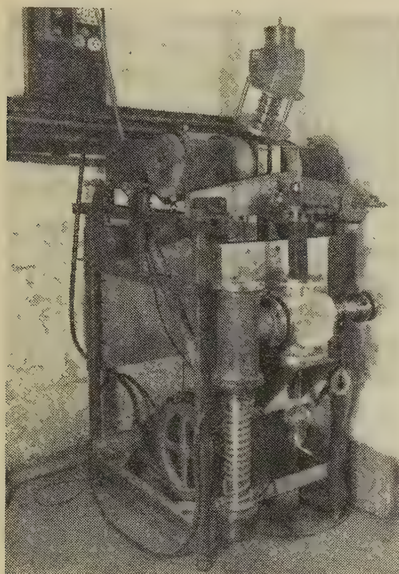


Fig. 3. — Ensemble de l'appareil.

défauts n'existeront pas. Les considérations précédentes sont exposées avec plus de détails dans un rapport intérieur [3].

Nous pensons que les méthodes de détermination par le calcul atteignent mal leur objet, qui est la réalisation d'instruments de performance élevée, car elles ne font aucune place au réglage pratique de ces instruments; elles ne tiennent pas compte des facteurs accidentels; enfin, les calculs doivent s'appuyer sur des hypothèses parfois douteuses. Nous soulignerons les avantages de la méthode que nous avons définie et appliquée : elle traite globalement les deux problèmes de la détermination d'un profil optimum et de la mise en place de ce profil; elle tient tout naturellement compte des facteurs accidentels, et enfin elle ne nécessite aucune hypothèse particulière sur le fonctionnement d'un organe.

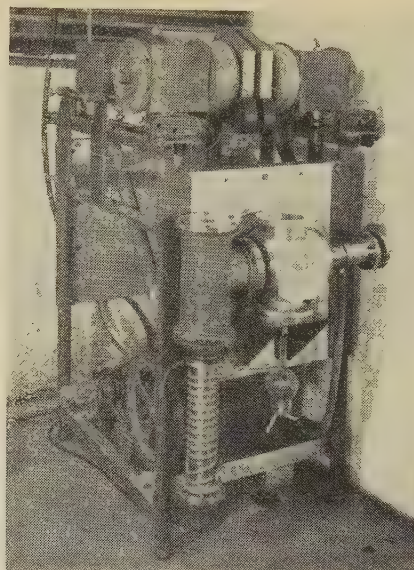


Fig. 4. — Canalisation à vide et électroaimant avec les pièces polaires profilées.

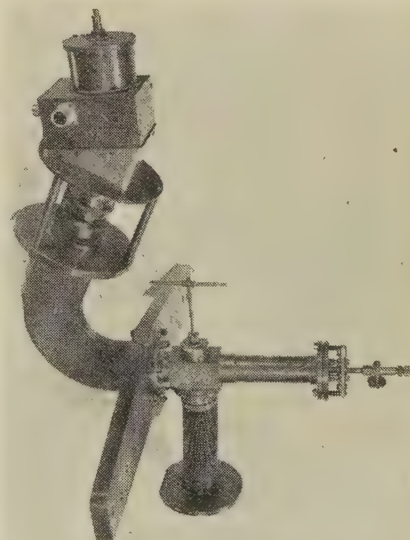
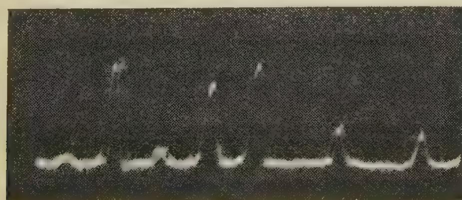
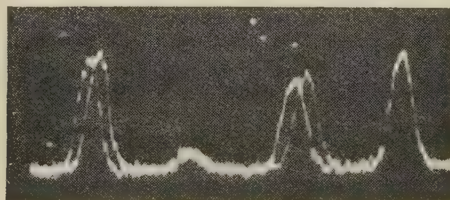


Fig. 5. — Tube spectrométrique complet.



a.



b.

Fig. 6. — Spectre de masse du xénon.

a. Spectre complet; *b.* Une partie du spectre fortement dilatée. (Le niveau élevé du bruit de fond et le dédoublement des images sont dus aux imperfections des circuits électroniques amplificateurs et de balayage.)

Un résultat d'une grande importance s'est dégagé au cours de l'étude. Nous avons, en effet, constaté que la performance pratique en résolution dépassait nettement celle que l'on pouvait calculer à partir de la largeur des fentes et du grandissement. Ceci a attiré notre attention sur l'émission des ions par la source. L'hypothèse, couramment admise, selon laquelle la fente-source émet suivant la loi de Lambert est très pessimiste et le mécanisme réel beaucoup plus favorable [4]. Nous avons pu infirmer la première hypothèse, car notre méthode de réglage a compensé automatiquement les aberrations géométriques de la source.

Dans le proche avenir, nous nous proposons de démontrer expérimentalement que le pouvoir séparateur d'un spectromètre de masse ne dépend pas de la largeur de la fente-source; et d'augmenter autant que possible, en améliorant l'optique des sources, la luminosité des appareils. Ultérieurement, une étude plus systématique sur les paramètres physiques des sources et sur la focalisation transversale doit permettre d'autres progrès.

Manuscrit reçu le 11 septembre 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Larkin Kerwin. — *Rev. Sc. Instr.*, 1949, **20**, 36.
[2] Spighel. — *J. Physique Rad.*, 1950, **11**, 764.
[3] Bernard-Lévy, Cassignol et Moreau. — Un spectromètre de masse corrigé de l'aberration angulaire, rapport C. E. A. n° 80.
[4] Cassignol et Nief. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 615.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM. TOME 14, JANVIER 1953, PAGE 34.

SÉPARATEUR ÉLECTROMAGNÉTIQUE POUR LES ISOTOPES D'ÉLÉMENTS LÉGERS ET MOYENS

Par René BERNAS.
Attaché de Recherches au C. N. R. S.
Commissariat à l'Énergie atomique.

Sommaire. — On décrit un séparateur d'isotopes à secteur magnétique de 60° qui permet, grâce à un procédé de neutralisation de la charge d'espace, d'utiliser efficacement des faisceaux d'ions intenses.

La source d'ions pour solides est essentiellement constituée par une décharge à cathode chaude dans un champ magnétique et fournit un faisceau d'ions focalisés de plus de 10 mA.

Le résultat des premières séparations (Zn, Sb, Hg) indique que les isotopes de divers éléments peuvent être obtenus en quantités variant de 10 à 100 mg par 24 h.

Introduction. — L'application du spectromètre de masse à la séparation des isotopes en quantités pondérables a été envisagée très tôt par différents expérimentateurs [1], [2]. Mais jusqu'en 1938 l'utilisation de cette méthode fut limitée à un très petit nombre d'éléments par l'absence de sources suffisamment intenses d'ions positifs [3], [4], [5]. Les progrès réalisés depuis une dizaine d'années à la fois dans le domaine des sources d'ions et de la technique du vide, ont permis le développement actuel des séparateurs électromagnétiques d'isotopes.

Des appareils de très grandes dimensions qui n'ont encore fait l'objet d'aucune publication ont été construits aux États-Unis pendant la période 1942-1944 pour la séparation en grandes quantités des isotopes de l'uranium [6]. Un appareil du même type [7] fonctionne en Angleterre depuis 1950. Indépendamment, Koch [8] et Bergstrom et al. [9] ont mis au point deux séparateurs à faible débit utilisés presque exclusivement jusqu'à présent à la séparation des isotopes stables et radioactifs des éléments gazeux.

Le nombre sans cesse croissant de travaux nécessitant l'emploi d'isotopes séparés nous a conduit à réaliser l'appareil décrit dans cet article. Nous avons limité son domaine principal d'application aux éléments légers et moyens et nous nous sommes surtout efforcé d'obtenir un courant d'ions élevé. Nous avons cherché à améliorer la focalisation en neutralisant la charge d'espace. Les résultats obtenus jusqu'ici indiquent que l'intensité des courants d'ions reçus au collecteur est environ 20 fois plus élevée que celle mentionnée dans les publications [8] et [9].

1. **Détermination de l'analyseur.** — Les propriétés de focalisation du spectromètre de masse à simple déviation magnétique ont été étudiées par un grand nombre d'auteurs pour des champs magné-

tiques à limites rectilignes [10], [11] ou circulaires [12], [13], [14]. Un paramètre cependant n'est pas intervenu dans les calculs : la répulsion mutuelle des ions. Cet effet est négligeable pour les appareils d'analyse faisant usage de courants d'ions de l'ordre de 10^{-10} A, mais prend, dans le cas d'un séparateur, une importance de tout premier plan et conditionne partiellement le type d'appareil à utiliser.

La diminution de la densité de charge positive dans le faisceau peut être obtenue par deux procédés : augmentation de la section du faisceau et diminution du temps de passage des ions ou accumulation au sein du faisceau de charges négatives.

Nous avons porté notre choix sur la deuxième méthode, car la première nécessiterait des tensions d'accélération très élevées, donc des champs magnétiques très intenses.

Les trois types d'analyseurs couramment employés sont représentés sur la figure 1.

Nous avons éliminé le type *b* qui nécessite un faisceau incident parallèle particulièrement sensible à l'effet de la charge d'espace et qui possède, pour un rayon de courbure donné des ions, un coefficient de dispersion massique deux fois plus faible que les types *a* et *c*. La sélection entre *a* et *c* fait intervenir deux facteurs opposés : le volume de l'électroaimant et la longueur des trajectoires moyennes des ions.

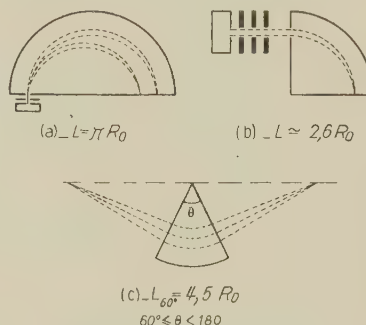


Fig. 1. — Différents types d'analyseurs magnétiques. L, Longueur de la trajectoire moyenne des ions; R_0, Rayon de courbure moyen.

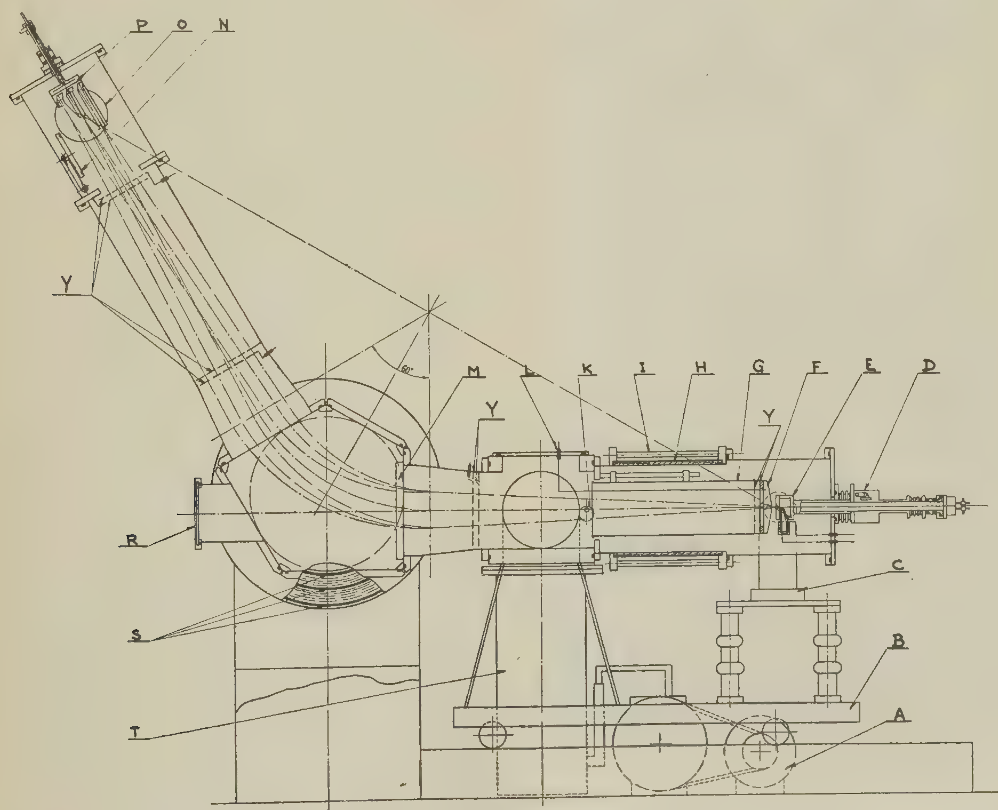


Fig. 2. — Schéma d'ensemble du séparateur.

E, Source d'ions; C, Électroaimant de la source; D, Sas du support de filament; F, Électrode accélératrice supportée par le cylindre de cuivre G; H, Cylindre de pyrex; I, Colonnettes d'araldite; K, Came de réglage de la distance interélectrode EF; L, Sortie isolée; M, Partie amovible des faces polaires; P, Collecteur; O, Fenêtre de pyrex; N, Clapet de fermeture de l'enceinte collectrice; R, Fenêtre pour étude du faisceau non dévié; S, Circulation d'eau des bobines; T, A, Pompes à vide; B, Chariot; Y, Grilles pour neutralisation de la charge d'espace.

Malgré le désavantage présenté par le type *c* en ce qui concerne le deuxième point, il nous a paru préférable à l'analyseur à 180° par les dimensions réduites de l'électroaimant et par le fait que le volume de la source d'ions n'est pas limité par les dimensions de l'entrefer. Cette particularité déjà appréciable pour les spectromètres de masse d'analyse est d'autant plus précieuse ici que les tensions employées sont élevées (30 à 50 kV) et qu'il est difficile d'éviter la condensation des vapeurs métalliques sur les isolants. De plus, l'analyseur *c* permet de régler la valeur du champ magnétique de source, indépendamment de celle du champ magnétique principal.

Compte tenu des remarques précédentes, nous avons fixé à 60° l'angle du secteur *c* et à 50 cm le rayon de courbure moyen.

2. **Description de l'appareil.** — A. L'ÉLECTROAIMANT ET L'ENCEINTE A VIDE. — L'électroaimant est entièrement réalisé en fer Armco;

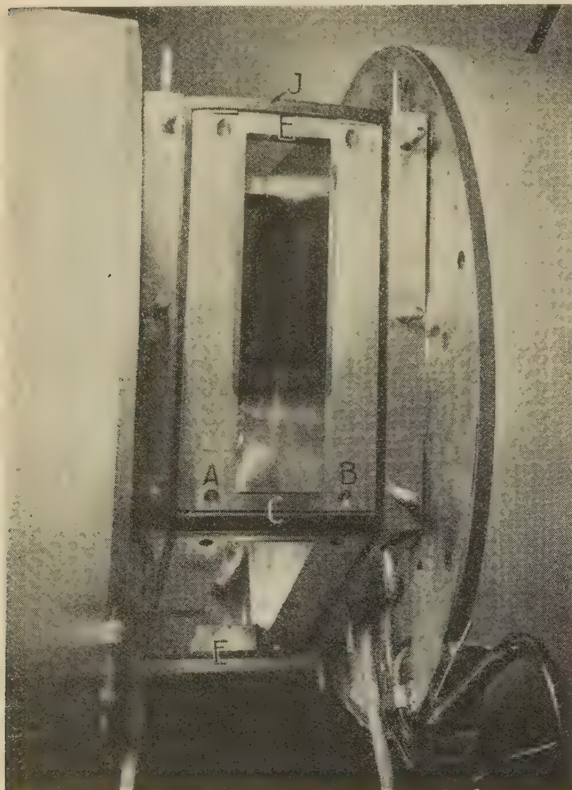


Fig. 3. — Chambre de déflexion du séparateur.
E, Entretoises vissées; A et B, Fer Armco; C, Acier inoxydable amagnétique; J, Joint en caoutchouc plat avec bandes transversales moulées en V.

il a été conçu d'après des caractéristiques déjà publiées [15], mais avec un entrefer de plus grandes dimensions. Son poids total est de 5 t. Le circuit magnétique en forme d'U est constitué par trois pièces assemblées par boulons. Les noyaux polaires ont 40 cm de diamètre. L'entrefer est de 66 mm et le parallélisme de ses deux faces est réalisé à ± 0,01 mm. Pour permettre la mise en place de pièces profilées et corriger l'aberration due à l'ouverture angulaire du faisceau, les faces polaires M (*fig.* 2) sont amovibles.

Chaque bobine est constituée par une carcasse en bronze moulé sur laquelle sont montés en enroulements alternés 2 500 spires de fil de cuivre et trois couches de tubes pour la circulation d'eau. Nous avons employé du fil carré de faible section (5,3 mm²) afin de n'avoir pas à stabiliser de courant élevé sous basse tension.

Le champ maximum obtenu est de 12 000 Oe pour un courant de 18 A. Les épanouissements polaires ont une section pentagonale; ils sont utilisés comme parois de la chambre à vide. Des entretoises joignent les sommets du pentagone (*fig.* 3 et sur chaque face s'applique une plaque de fermeture en laiton. L'étanchéité de l'ensemble est assurée par un seul joint en caoutchouc plat moulé.

Les canalisations à vide ont un diamètre de 20 cm. Le groupe de pompage, raccordé à l'appareil par une membrane métallique flexible de même diamètre, comporte une pompe à diffusion Edwards 903 A (1500 l/s à 10^{-4} mm Hg), avec vanne et piège à air liquide. Un piège à neige carbonique et deux pompes à palettes BL 14 (C. G. R.) constituent l'installation de vide préliminaire.

Afin de faciliter les démontages et l'accès de la chambre de l'analyseur, la partie antérieure de l'appareil est montée sur chariot.

L'isolement de la source d'ions est obtenu par l'intermédiaire d'un cylindre de pyrex supporté par des colonnettes d'araldite moulée.

B. ALIMENTATIONS ET RÉGULATIONS [1]. — L'électroaimant est alimenté par un groupe moteur-générateur avec excitatrice séparée fournissant 20 A sous 600 V. La puissance à fournir à l'excitatrice est inférieure à 10 W. Le principe de l'alimentation de courant régulé est représenté par le schéma de la figure 4. La tension produite aux bornes de la résistance de mesure R est opposée à une fraction connue de la tension de référence par l'intermédiaire du potentiomètre de réglage P. La tension d'erreur, amplifiée, sert à commander l'excitation de l'excitatrice. Les connexions sont réalisées en contre-réaction, de telle sorte que les fluctuations de tension restent toujours voisines de zéro. Les mesures de stabilité effectuées pendant une

[1] Toutes les alimentations et les dispositifs de régulation électroniques du séparateur ont été réalisés par la Division des Constructions Électriques du C. E. A. Une description plus détaillée de ces appareils est contenue dans le rapport C. E. A. n° 163.

période d'une heure ont donné les résultats suivants :

$$\frac{3}{10\,000} > \frac{\Delta I}{I} > \frac{1}{10\,000} \quad \text{pour} \quad 2 < I < 16 \text{ A}.$$

L'alimentation haute tension fournit 50 mA sous 50 000 V, elle est stabilisée par un circuit dérivé

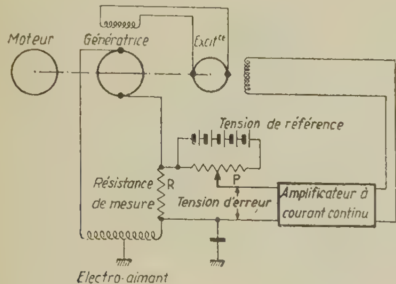


Fig. 4. — Schéma de principe de l'alimentation de courant régulé de l'électroaimant. L'amplification de la tension d'erreur s'effectue en alternatif, après modulation par vibreur fonctionnant à 500 p/s.

de celui de Pepinsky et Jarmotz [16] utilisant une triode (450 TH) en série avec le circuit d'utilisation. La tension de correction est transmise à la grille de cette lampe par l'intermédiaire d'un transformateur d'isolement en verre de faibles dimensions fonctionnant à 1,2 Mc. Les variations de tension en charge ne dépassent pas 2,5 V entre 5 000 et 40 000 V.

C. La source d'ions. — La source d'ions du séparateur (*fig.* 5) devait satisfaire à quatre conditions essentielles :

1° Fournir un faisceau laminaire de plusieurs milliampères d'ions monocinétiques;

2° Avoir un rendement d'ionisation élevé;

3° Ioniser indifféremment des substances gazeuses ou solides très diverses;

4° Fonctionner sans interruption pendant plus de 24 h.

Une source faisant usage d'une décharge à cathode chaude dans un champ magnétique nous a semblé devoir se rapprocher le plus de ces conditions. Les caractéristiques de ce type de décharge ont été étudiées par différents auteurs [17], principalement en ce qui concerne les phénomènes d'ionisation, de diffusion et les conditions de stabilité du plasma. D'après le processus même de formation des ions par impact électronique et la neutralité du plasma de la décharge, cette source permet d'obtenir des ions sensiblement monocinétiques.

Le champ magnétique qui limite la diffusion des ions perpendiculairement à l'axe de la décharge assure une forte densité ionique autour de la colonne d'électrons primaires. La géométrie de la source est telle que cette colonne est située au voisinage immédiat de la fente d'extraction et de l'orifice émettant les vapeurs métalliques. L'introduction en L d'une électrode portée au potentiel du filament permet de doubler le courant de décharge, ainsi que l'intensité du faisceau d'ions extraits.

Les conditions de fonctionnement de la source sont résumées dans le tableau ci-dessous :

Tableau I.

Alimentation filament.........	~ 50 A, 3 V
Tension d'arc (*).............	60 à 150 V
Courant d'arc...	0,2 à 3 A
Intensité du champ magnétique de source..................	100 à 600 gauss
Pression.....................	≃ 10^{-3} mm Hg

(*) Le terme d'arc est impropre, puisque la décharge a en fait les caractéristiques d'une colonne négative, mais nous nous conformons ici à la terminologie habituelle.

Nous avons mis au point un système démontable de four à résistance et de cheminée. Il permet d'atteindre une température de 800° et assure le fonctionnement de la source avec des substances

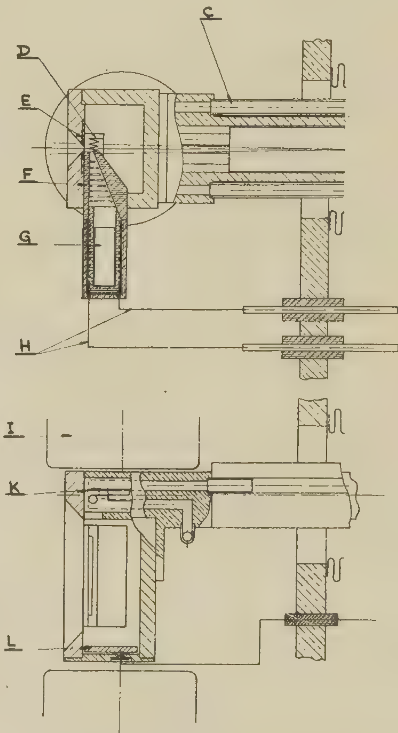


Fig. 5. — Source d'ions.

C, Circulation d'eau; D, Filament de tungstène de 1 mm de diamètre; E, Plaque chauffée pour éviter les condensations sur les bords de la fente d'extraction; F, Cheminée en Lava; G, Four à résistance de tungstène et creuset (Lava); H, Amenées de courant pour F et G; I, Pôles de l'électroaimant de source (situés dans l'enceinte vidée); K, L, Réflecteurs portés au potentiel du filament. Les parois de la chambre d'arc sont en graphite.

solides ayant une tension de vapeur supérieure à celle de l'indium. La cheminée F (*fig.* 5) est chauffée par le rayonnement d'un filament de tungstène tendu dans son plan médian.

Nous avons étudié le fonctionnement de la source d'ions dans une enceinte séparée; les résultats suivants ont été obtenus :

TABLEAU II.

Élément.	I_{moyen} (mA).	I_{max} (mA).	W_{four} (W).	I_a (A).	V_a (V).
A^+	10,5	12	–	2	75
N_2^+	11	–	–	2	100
Mg^+	9	10	45	–	–
Zn^+	7,8	–	45	0,5	60
Cd^+	8	11	80	1	40
Pb^+	8	8,6	100	1,7	85

I_{moyen}, courant d'ions obtenu pendant une durée minimum de 1 h;
I_a, V_a, courant et tension d'arc;
W_{four}, puissance dissipée dans le four pour maintenir la décharge sans gaz d'apport.

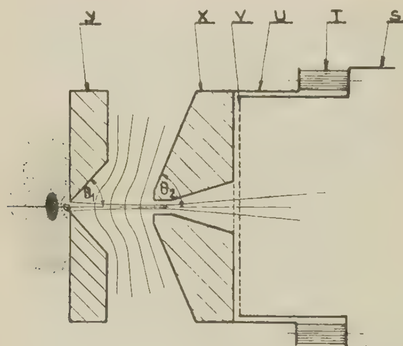
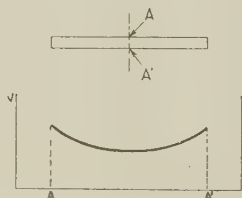


Fig. 6. — *a*. Dispositif d'extraction et de focalisation du faisceau d'ions.

Y, Paroi antérieure de la source d'ions; X, Électrode accélératrice; V, Grille du dispositif de neutralisation de la charge d'espace; U, Cylindre de garde; T, Isolateurs; S, Espace équipotentiel.



b. Représentation schématique de la distribution de potentiel dans une section du faisceau perpendiculaire au plan de la figure 6 *a*.

Les courants d'ions mentionnés ont été extraits par une fente de 2 × 50 mm et mesurés à une distance de 40 cm de la source. Le dispositif de mesure était composé d'une plaque collectrice précédée d'un cylindre terminé par deux grilles et porté à un potentiel négatif par rapport au collecteur. L'exactitude des résultats a été vérifiée à la fois par des mesures calorimétriques et par la masse de métal déposée par un faisceau de Cd^+.

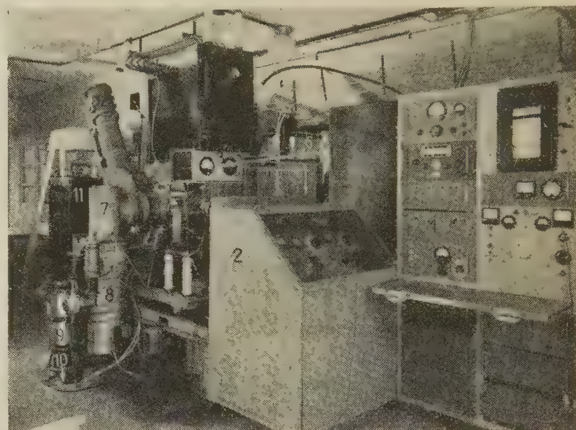


Fig. 7. — Photographie du séparateur.

1, Panneau de contrôle; 2, Alimentation de la source d'ions (isolée à 50 kV); 3, Alimentation du four et de la cheminée; 4, Source d'ions et électroaimant auxiliaire; 5, Section isolante; 6, Alimentation et régulation haute tension; 7, Piège à air liquide; 8, Pompe à diffusion; 9, Piège à carboglace; 10, Tubulure du pompage primaire; 11, Électroaimant; 12, Collecteur.

La présence des deux grilles est indispensable dès que l'intensité du faisceau dépasse 5 mA. En effet, dans certaines conditions, et à cause de l'effet d'écran du faisceau, des électrons peuvent circuler librement suivant son axe et fausser les mesures.

Le rendement de la source peut être exprimé par le rapport η du nombre d'ions N_i au nombre de molécules neutres N_m issues de la source.

Dans le cas de l'argon, nous avons obtenu $\eta = 33$ pour 100.

Pour une substance solide (Pb), nous avons obtenu $\eta = 25$ pour 100.

D. PRODUCTION DU FAISCEAU D'IONS. — La déviation magnétique symétrique à 60° permet d'utiliser un faisceau d'ions très ouvert; il n'est donc pas nécessaire d'employer un système de lentilles électrostatiques complexe. Le dispositif adopté (*fig.* 6 *a*) ne comporte qu'une électrode accélératrice. La paroi antérieure de la source est constituée par une plaque de graphite de 1 cm d'épaisseur. Elle est taillée en biseau pour suivre sensiblement la forme des équipotentielles correspondant à un faisceau extrait légèrement convergent. Les angles θ_1 et θ_2 ont respectivement pour valeur 42 et 67°. La valeur de θ_1 a été obtenue empiriquement à partir de celle calculée par Pierce [18] pour un faisceau parallèle (67,5°). La distance moyenne entre électrodes est de 12 mm.

L'électrode accélératrice est supportée par un long cylindre de cuivre G (*fig.* 2) et sa position peut être modifiée en cours de fonctionnement à l'aide de la came K.

3. Effet et neutralisation de la charge d'espace. — Si l'on excepte la zone interélectrode, c'est dans l'espace équipotentiel situé entre l'électrode accélératrice F (*fig.* 2) et l'entrée de l'analyseur que la divergence du faisceau sous l'influence de la charge d'espace est la plus critique. Elle a, en effet, pour résultat de remplacer la fente de source qui joue le rôle d'objet pour la lentille magnétique par une série d'objets virtuels situés sur l'axe du faisceau entre la source et l'entrée du champ. L'aberration de sphéricité de l'image peut alors prendre des proportions considérables.

Nous avons reproduit sur la figure 8 une série de spectres de masse du zinc qui mettent en évidence l'importance de cet effet. Ces spectres ont été obtenus dans des conditions identiques, mais avec des intensités différentes du courant d'ions au collecteur. La variation du pouvoir séparateur est illustrée nettement par les spectres 1, 2, 3 correspondant à des intensités respectives de 1, 2 et 4 mA.

Nous avons décrit précédemment [19] le principe d'une méthode de neutralisation : les ions positifs accélérés ionisent le gaz résiduel et produisent des électrons lents dont l'accumulation au sein du faisceau neutralise la charge d'espace positive.

Cette accumulation est rendue possible :

1° par la répartition transversale du potentiel de charge d'espace qui tend à maintenir les électrons au voisinage du plan médian du faisceau (*fig.* 6 *b*);

2° par un système de grilles portées à un potentiel négatif qui empêche l'extraction des électrons par la tension d'accélération des ions et limite leur écoulement suivant l'axe du faisceau.

La disposition des grilles est représentée schématiquement sur la figure 2. Elles divisent en trois zones l'espace parcouru par les ions. Chacun des ensembles Y est constitué par deux grilles distantes de 1 cm environ dont une, située à l'intérieur de la zone, est à la masse et l'autre portée à un potentiel négatif de 100 à 200 V par rapport à la première. Cette disposition est nécessaire pour conserver aussi étendu que possible l'espace équipotentiel parcouru par le faisceau. Nous ne nous sommes pas efforcé de neutraliser la charge d'espace dans la zone centrale (analyseur) où le faisceau est très étendu. L'amélioration apportée au pouvoir séparateur est considérable, ainsi qu'en témoignent les spectres 3 et 4 de la figure 8 obtenus successivement sans et avec une tension de — 200 V sur les grilles Y.

Il est possible de s'assurer par un calcul simple que la pression résiduelle la plus basse obtenue dans notre appareil ($5 \cdot 10^{-6}$ mm Hg) est suffisante pour obtenir en un temps très court la densité d'électrons nécessaire si l'espace parcouru par le faisceau est rigoureusement équipotentiel.

En effet, le nombre d'électrons produits par unité de volume du faisceau est

$$dn_1 = N_0 \sigma_i I \, dt,$$

où N_0 est la densité de molécules neutres;
σ_i la section efficace d'ionisation des molécules par les ions positifs accélérés;
I, le nombre d'ions franchissant par seconde 1 cm² de section du faisceau.

La disparition des électrons pendant la période

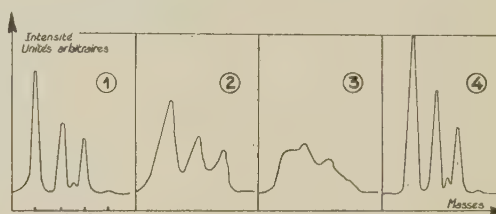


Fig. 8. — Spectres de masse du zinc illustrant l'influence de la charge d'espace sur le pouvoir séparateur et le rôle des grilles Y (*fig.* 2).

Ces quatre spectres ont été enregistrés au cours d'une même expérience (balayage magnétique; H. T. = 30 000 V; $p \simeq 2{,}5 \cdot 10^{-5}$ mm de Hg).

1° i_c = 1 mA, 2° i_c = 2 mA, 3° i_c = 4 mA : $V_Y = 0$
4° i_c = 4 mA V_Y = — 200 V

i_c, courant d'ions au collecteur; V_Y, tension sur les grilles Y.

précédant la neutralisation complète de la charge d'espace est due essentiellement à leur recombinaison avec les ions lents présents. Ceux-ci sont accélérés hors du faisceau, considéré comme plan et parallèle, par le champ $E = \frac{2\pi I e}{v_1}$ créé par la charge d'espace, v_1 étant la vitesse des ions rapides et e la charge électronique (E peut atteindre 500 V/cm pour les faisceaux utilisés dans l'appareil). Par la suite, nous considérerons que les ions lents ont acquis en moyenne une énergie de 20 eV; si v_2 est la vitesse correspondante, on a

$$dn_2 = -\alpha n_- n_+ \, dt = -\alpha \frac{n_-^2}{v_2} \, dt,$$

n_- et n_+, densité des électrons et des ions lents dans le faisceau;
α, coefficient de recombinaison, d'où

$$dn = dn_1 + dn_2 = \left(N_0 \sigma_i I - \alpha \frac{n_-^2}{v_2} \right) dt.$$

Le temps nécessaire à l'établissement de l'équilibre sera donc

$$\tau = \int_0^N \frac{dn}{N_0 \sigma_i I - \alpha \frac{n^2}{v_2}}, \qquad \text{avec} \quad N = \frac{I}{v_1}.$$

Les expériences de Biondi [20] permettent de fixer pour α une limite supérieure de $8,8.10^{-10}$ cm³/s pour $p < 10^{-3}$ mm Hg. D'autre part, les valeurs de σ_i pour des ions de 30 000 V sont connues pour un petit nombre d'éléments par les travaux de Sherwin [21] et de Keene [22]. Nous prendrons ici pour valeur moyenne $\sigma_i = 0,5.10^{-16}$ cm².

Il en résulte que si $I = 10$ mA/cm²,

$$\tau = \frac{5.10^{-8}}{p} \text{ s} \qquad (p \text{ en mm Hg}).$$

A la pression de 5.10^{-6} mm Hg, la charge d'espace serait donc neutralisée en un temps de l'ordre de 1.10^{-2} s. La présence d'un gradient de potentiel suivant l'axe du faisceau contribuant à diminuer la densité électronique augmenterait proportionnellement ce temps.

Une expérience utilisant un faisceau pulsé est en cours pour déterminer la valeur de τ.

4. **Collection des ions.** — Le dépôt de substances transportées sous forme d'ions rapides est rendu difficile par la réflexion sous forme d'ions ou d'atomes neutres d'une partie des ions incidents et par la réévaporation due à l'échauffement superficiel que produit l'impact du faisceau. Pour diminuer les pertes dues à ces causes, nous avons divisé chaque collecteur en deux parties : un réflecteur C recevant l'impact direct et une surface réceptrice B à l'abri du faisceau incident. L'ensemble représenté par la figure 9 a été réalisé pour la collection des isotopes du zinc; le refroidissement est assuré par une circulation d'eau dans la plaque de base. Pour d'autres éléments, un récipient contenant de l'azote liquide sert de support à la cible.

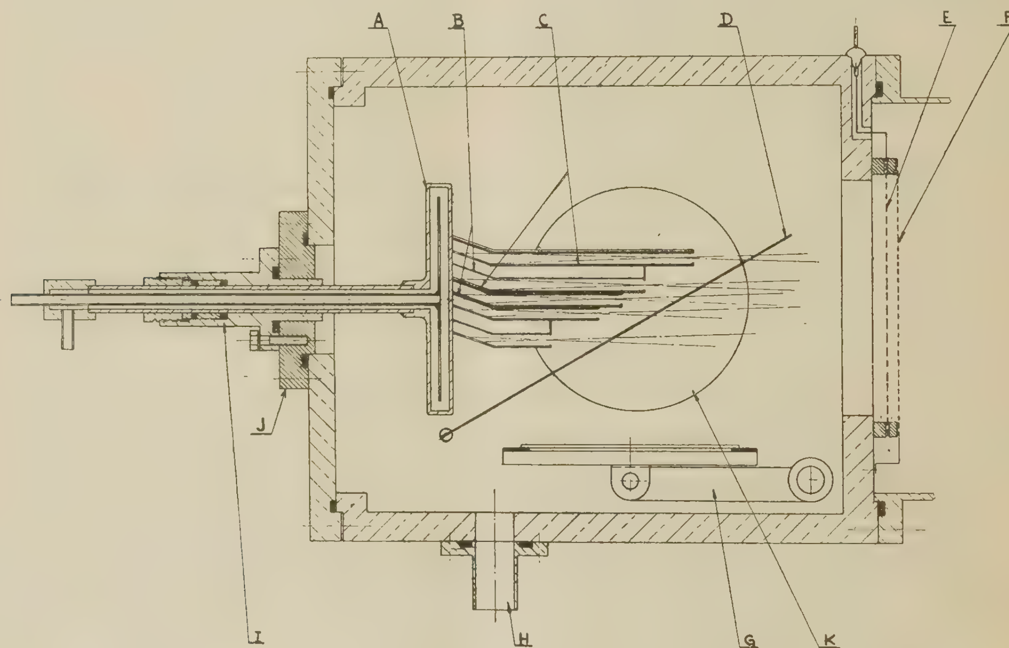


Fig. 9. — Collecteur.

A, Support refroidi par circulation d'eau et isolé par la pièce de plexiglass J; B, Surfaces réceptrices; C, Surfaces réflectrices; D, Écran amovible; E, F, Grilles pour neutralisation de la charge d'espace; G, Clapet permettant de remplacer les cibles sans interrompre le pompage dans le séparateur; H, Orifice de pompage primaire; I, Joint Wilson pour positionnement du collecteur; K, Fenêtre de pyrex.

Dans les cas étudiés jusqu'ici, les dépôts obtenus contiennent une proportion assez grande de métal provenant de la pulvérisation du collecteur par les ions incidents. Dans le cas du zinc, par exemple, le réflecteur étant en molybdène et le récepteur en argent, les 7,5 mg de ^{64}Zn collectés étaient accompagnés de 1,1 mg de molybdène.

Le réglage préliminaire des différents faisceaux d'ions dans les collecteurs correspondants s'effectue visuellement par la fenêtre O (*fig.* 2), les faisceaux apparaissant sous forme de rubans luminescents bien délimités. Un dispositif de compensation a été mis au point où le faisceau corrige lui-même

les dérives éventuelles pendant les collections de longues durées.

5. **Résultats**. — Nous avons étudié sur quelques éléments les conditions de fonctionnement, les possibilités et les limitations de notre appareil. Les résultats de ces essais sont résumés dans le tableau III.

TABLEAU III.

(Tension d'accélération : 30 000 V.)

Élément.	Isotopes collectés.	Durée de collection (h).	Quantité recueillie (mg).
Mg.......	24, 25, 26	1	1,6 (*)
Zn........	64, 66, 67, 68, 70	3	15 (*)
Sb........	121, 123	22	80 (*)
Hg.......	202	4	1

(*) Chiffre correspondant aux résultats des dosages chimiques effectués après analyse.

Au cours d'expériences plus récentes effectuées avec du zinc, le courant d'ions au collecteur a dépassé 4 mA en fonctionnement stable (*fig.* 8, spectre 4). Il semble que cette intensité puisse être augmentée en améliorant la focalisation initiale (entre X et Y, *fig.* 6 *a*), car un accroissement du courant d'arc se traduit actuellement par une

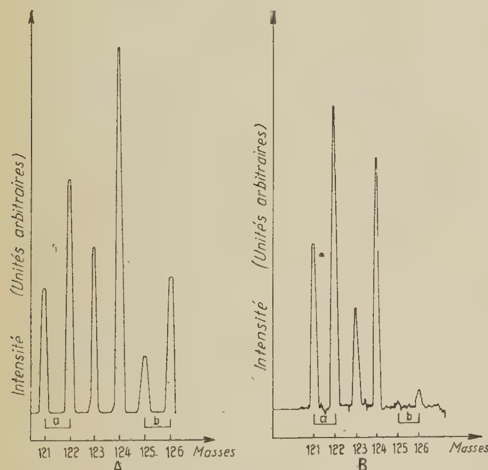


Fig. 10. — Spectres de masse de SbH_3 préparé à partir d'antimoine naturel (A) et d'antimoine enrichi en ^{121}Sb (B).

La comparaison des teneurs en ^{121}Sb et ^{123}Sb s'effectue par l'intermédiaire des pics *a* et *b* auxquels ne contribuent que les isotopes 121 ou 123. L'échantillon utilisé en B contenait 92 pour 100 de ^{121}Sb.

augmentation des pertes au niveau de l'électrode accélératrice.

Le degré de pureté isotopique des échantillons recueillis est indiqué par les figures 10 et 11. Dans la première, A et B représentent les spectres de masse de SbH_3 obtenus respectivement avec de l'antimoine naturel et de l'antimoine enrichi en ^{121}Sb (²). Le cliché de la figure 11 est relatif au mercure (³). La partie supérieure a été obtenue avec une source de mercure naturel; la partie inférieure avec l'échantillon enrichi en ^{202}Hg mentionné au tableau III.

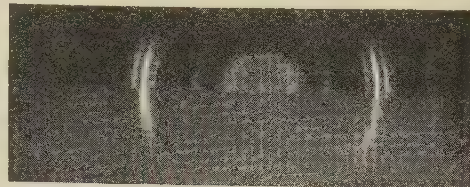


Fig. 11. — Anneaux obtenus à l'étalon interférentiel Pérot-Fabry à partir de la raie 2537 Å du mercure.

Partie supérieure : source de mercure naturel; Partie inférieure : source de mercure enrichi en ^{202}Hg (^{202}Hg—85 pour 100).

La durée de collection a été limitée jusqu'à présent par l'usure du filament de la source d'ions ou l'apparition de décharges au voisinage des électrodes. Un dispositif qui permettra le remplacement rapide du filament sans interrompre le pompage est en cours de réalisation. Le fonctionnement ininterrompu ne sera alors limité que par la capacité du four ou la métallisation progressive des isolants.

Les conditions imposées pour chaque séparation étant essentiellement variables, les quantités d'isotopes collectées ne peuvent être précisées exactement à l'avance. Le résultat des essais effectués jusqu'à présent permet cependant d'envisager que, lorsque l'élément peut être utilisé directement dans la source d'ions il est possible d'obtenir des quantités variant de 10 à plus de 100 mg par jour. L'emploi de composés halogénés et de carbonyles est envisagé, mais l'examen des spectres de dissociation de ces composés par bombardement électronique déjà publiés [24] indique que les quantités collectées ne seraient en moyenne que 10 à 20 pour 100 de celles mentionnées ci-dessus.

Conclusion. — En fixant à 50 cm le rayon de courbure moyen des trajectoires (c'est-à-dire à 5 mm la constante de dispersion), nous avons limité le domaine principal d'application du séparateur aux éléments de masses légères et moyennes. Le cas du mercure a cependant montré qu'il était possible d'étendre ce domaine aux éléments les plus lourds en réduisant l'intensité du faisceau d'ions ou la pureté isotopique des produits.

(²) La préparation et l'analyse des échantillons de SbH_3 ont été effectuées par le groupe de spectrométrie de masse du service de Chimie Physique du C. E. A.

(³) Ce cliché obtenu par M. Cojan nous a été aimablement communiqué par M. J. Brossel.

La limitation en intensité des faisceaux d'ions utilisables due à la répulsion électrostatique a été éliminée grâce à une méthode de neutralisation de la charge d'espace et les modifications du dispositif d'extraction des ions qui sont envisagées devront permettre d'accroître encore de façon notable le courant reçu au collecteur sans transformer la source d'ions.

Plusieurs études sont en cours avec les isotopes recueillis lors des premières séparations (Zn, Hg, Sb). Des données préliminaires sur la réaction $^{64}Zn\,(n, \alpha)\,^{61}Ni$ ont été publiées [23] et ces expériences se poursuivent avec les autres isotopes de cet élément.

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à Mme I. Joliot-Curie, M. F. Perrin et M. F. Joliot-Curie pour l'intérêt qu'ils ont porté à la réalisation de ce projet. C'est grâce à leur appui qu'en 1949 les moyens nécessaires ont pu être mis à ma disposition au Commissariat à l'Énergie atomique.

Cet appareil n'a pu être construit qu'avec la participation de nombreux membres du C. E. A. : MM. L. Kaluszyner, ingénieur E. S. E., J. L. Sarrouy et J. Druaux ont apporté une aide particulièrement efficace dans la mise au point de cet appareil. Je tiens à les en remercier, ainsi que MM. Gavard, Rousset et Knittner pour leur collaboration technique active.

L'essentiel de la réalisation de l'appareil a été effectué dans le cadre du Service des Accélérateurs du C. E. A. Je remercie les Membres de ce Service et son chef, M. S. Winter, pour les facilités et les conseils qu'ils m'ont accordés.

Manuscrit reçu le 11 septembre 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Aston. — Isotopes, 1922, p. 136.
[2] Morand. — *C. R. Acad. Sc.*, 1926, **182**, 460; *Ann. Physique*, 1927, **7**, 164.
[3] Smythe, Rumbaugh, West. — *Phys. Rev.*, 1934, **45**, 724.
[4] Yates E. L. — *Proc. Roy. Soc.*, 1938, **168**, 148.
[5] Walcher W. — *Z. Physik*, 1936, **108**, 376.
[6] Keim C. P. — Electromagnetic separation of stable isotopes. *Ann. Rev. Nuclear Sc.*, 1952, p. 263.
[7] Allen W. D. — *Nature*, 1951, **168**, 451.
Cockcroft J. — *Proc. Roy. Soc.* A, 1952, **211**, 165.
[8] Koch J. et Bendt-Nielsen B. — *D. Kgl Danske Vidensk. Selskab Mat. Fys. Medd*, 1944, **21**, n° 8.
[9] Bergstrom I. et al. — *Arkiv Fysik*, 1949, **11**, 281.
[10] Stephens W. E. — *Phys. Rev.*, 1934, **45**, 513.
[11] Cartan L. — *J. Physique Rad.*, 1937, **8**, 454.
[12] Kerwin L. — *Rev. Sc. Instr.*, 1949, **20**, 36.
[13] Spighel M. — *J. Physique Rad.*, 1949, **10**, 207.
[14] Cassignol C. et Nief G. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 615.
[15] Bernas R. et Nier A. O. — *Rev. Sc. Instr.*, 1948, **19**, 895.
[16] Pepinsky R. et Jarmotz P. — *Rev. Sc. Instr.*, 1948, **19**, 247.
[17] Characteristics of electrical discharges in magnetic fields (N. N. E. S. I 5), édité par A. Gutherie et R. K. Wakerling, Mc Graw-Hill, New-York, 1949.
[18] Pierce J. R. — *J. Appl. Physics*, 1940, **11**, 548.
[19] Bernas R. et Sarrouy J. L. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **233**, 19, 1092.
[20] Biondi M. A. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 1078.
[21] Sherwin C. L. — *Phys. Rev.*, 1940, **57**, 814.
[22] Keene J. P. — *Phil. Mag.*, 1949, **40**, 303.
[23] Faraggi H. et Bernas R. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952 **234**, 1684.
Faraggi H., Bernas R. et Bonnet A. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **35**, 425.
[24] Sites J. et Baldock R. — USAEC, Y 754.

TRAITEMENT DES ÉMULSIONS NUCLÉAIRES DE 100 A 1000 μ D'ÉPAISSEUR

Par GEORGES MARGUIN,
Attaché de Recherches au C. N. R. S.,
Institut de Physique atomique de l'Université de Lyon.

Sommaire. — Exposé d'une méthode de traitement employée pour les émulsions Ilford G 5 qui permet d'obtenir un développement uniforme dans toute l'épaisseur avec une distorsion faible.

Introduction. — Au cours de nos premiers travaux sur les plaques nucléaires, nous avons expérimenté les méthodes de traitement mises au point dans différents laboratoires et résumées dans un ouvrage par Yagoda [1]. La méthode du développement en température de Dilworth, Occhialini et Payne [2] nous a donné les meilleurs résultats. Mais nous avons constaté que sa limite d'utilisation était atteinte pour des émulsions de 200 μ et de nombreuses mesures de diffusion multiple sur de longues traces au minimum d'ionisation ont mis en évidence une distorsion générale de la gélatine, qui rendait illusoire toute étude précise. Dans le but de réduire le plus possible cette distorsion, d'obtenir un développement uniforme en profondeur et d'employer des émulsions de plus grande épaisseur, nous avons mis au point une méthode de traitement qui tient compte des études des chercheurs de l'Université de Bristol [3] et de l'Université de Bruxelles [4] et [5].

A. **Préparation du traitement.** — L'installation nécessaire comprend trois appareils : un réfrigérateur, une étuve, un four à infrarouge.

1. Réfrigérateur. — Un appareil commercial transformé permet d'effectuer les différentes phases qui nécessitent une basse température. Le prétrempage à l'eau distillée, le trempage dans le révélateur et l'arrêt du développement se font dans de petites cuvettes (50 cm³) en matière plastique, maintenues à température constante à l'intérieur du réfrigérateur. Le fixage et le lavage s'opèrent en circuit fermé dans le même appareil. Des cuves de grande capacité (2 000 cm³) renfermant le fixateur F et l'eau de dilution D nécessaires à un seul traitement, sont maintenues à basse température. Une pompe centrifuge P à turbine inoxydable amène le liquide par une série de trous dans le bas d'une cuvette C en acier inoxydable. La plaque nucléaire N est posée sur une plaque de verre à mi-hauteur de cette cuvette. Ainsi le fixateur circule au-dessus de la plaque avec un flux laminaire lent et uniforme, puis retombe par un trop-plein dans la cuve de départ.

2. Étuve. — La phase active du développement s'effectue par la méthode de la plaque chaude. La plaque nucléaire est posée par sa face de verre sur une plaque métallique bonne conductrice, très plane. Un bon contact entre elles est maintenu par une légère pression exercée par deux fils de caoutchouc qui ne touchent l'émulsion qu'à ses deux extrémités sans la déformer sensiblement.

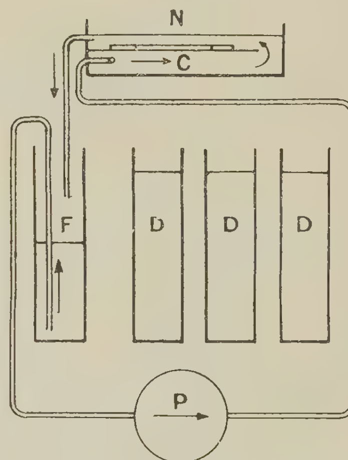


Fig. 1.

L'ensemble de ces deux plaques est introduit par des glissières dans un tube métallique cylindrique, muni d'une base qui assure l'horizontalité de l'émulsion. Cette cuve de développement est fermée par un bouchon percé de deux trous, qui permet de faire circuler un courant d'azote autour des plaques. Elle est placée à l'intérieur d'une étuve à thermostat, dans un bain d'eau, qui maintient la température de la cuve à 0,1° près.

3. Four a infrarouge. — La phase finale du séchage s'opère dans un four alimenté par une lampe infrarouge dont le flux calorifique est réglé par un rhéostat. La plaque à sécher est placée, au-dessus de la lampe, sur une plaque de verre mince, dans une enceinte dont l'atmosphère est contrôlée par un

thermomètre et un hygromètre. Le séchage peut s'effectuer à température et hygrométrie constantes toutes ouvertures fermées ou à hygrométrie décroissante, au moyen d'un ventilateur, d'auvents et d'une cheminée qui facilitent les courants de convection.

B. **Phases du traitement**. — Au cours des phases successives, nous avons cherché à réduire le plus possible les causes de distorsion générale en évitant surtout une variation brusque de température, d'acidité et d'humidité de l'émulsion. En outre, pendant tout le traitement, de très grandes précautions doivent être prises pour supprimer la distorsion locale produite par des poussières, des impuretés des bains et des contacts accidentels.

1. Prétrempage dans l'eau distillée. — La plaque nucléaire étant refroidie à 5° C est immergée dans de l'eau distillée, à la même température. Ce prétrempage produit un gonflement de l'émulsion qui permet une réduction sensible du temps de pénétration du révélateur.

2. Trempage dans le révélateur. — Le révélateur choisi a la formule suivante :

Eau distillée pour........................	1000 cm^3
Chlorhydrate de diaminophénol (amidol)...	3 g
Sulfite de sodium anhydre	10 g
Sulfite acide de sodium (P. S. = 1,32)....	10 cm^3

Cette solution s'oxydant rapidement à l'air doit être préparée juste avant son emploi, pour un seul traitement. L'amidol a le grand avantage, en solution acide de pH 6,6 de développer l'émulsion uniformément en profondeur.

Ce révélateur possède, de plus, les qualités suivantes : sa vitesse de pénétration est assez grande par suite de sa simplicité et de sa faible concentration; sa stabilité est bonne de 5 à 30° C; sa faible acidité réduit le gonflement de l'émulsion et diminue la distorsion dans la phase de développement.

La plaque nucléaire, après égouttage sommaire, est plongée dans ce révélateur à 5° C, le temps nécessaire à la pénétration dans toute l'épaisseur de la plaque, avec une agitation lente de la solution [6].

3. Développement a la plaque chaude. — L'émulsion étant totalement imprégnée, la plaque est sortie du bain, égouttée et tamponnée délicatement sur les deux faces avec un papier absorbant à grain très fin, pour enlever l'excès de révélateur qui produirait un surdéveloppement en surface. Elle est ensuite posée, l'émulsion au-dessus, sur la plaque métallique de la cuve de développement, et maintenue en contact par deux élastiques. L'ensemble est placé horizontalement pour éviter tout glissement de l'émulsion, et en atmosphère d'azote pour empêcher toute oxydation superficielle. La cuve fermée est immergée dans l'eau de l'étuve à température constante, pendant le temps nécessaire au développement. La température peut être fixée entre 25 et 30° C suivant le degré de développement désiré.

4. Arrêt du développement. — Le développement est arrêté successivement par abaissement de température, puis par l'action d'un bain d'arrêt. Pour cela, l'ensemble de la cuve et du bain d'immersion est sorti de l'étuve et refroidi lentement par un courant d'eau jusqu'à la température de 13° C environ. Puis la température de la cuve est abaissée à 5° C à l'intérieur du réfrigérateur, et la plaque nucléaire est immergée dans un bain d'arrêt à la même température pendant une durée égale à celle de la pénétration du révélateur. Le bain d'arrêt utilisé est une solution d'acide acétique dilué à 5/1000e de pH 3,6. Après un rinçage à l'eau distillée, la plaque est prête à être fixée.

5. Fixage. — Le fixateur choisi a la formule suivante :

Eau distillée pour........................	1000 cm^3
Thiosulfate de sodium.....................	400 g
Sulfite de sodium anhydre.................	10 g
Sulfite acide de sodium (P. S. = 1,32)	100 cm^3

Cette solution de pH 5,3 est acidifiée par le sulfite acide de sodium qui, en présence de sulfite neutre, joue le rôle de tampon entre le thiosulfate et le révélateur et évite ainsi la formation de taches colorées d'oxydation dans l'épaisseur de l'émulsion.

Cette phase du traitement est susceptible de produire une distorsion importante par suite de l'enlèvement d'une quantité importante de bromure d'argent. Il est donc nécessaire de réduire et de rendre uniformes les déformations de la gélatine.

L'acidité du fixateur diminue le gonflement de l'émulsion au cours du fixage. L'important volume de solution utilisé à 5° C permet le fixage complet sans changement de bain. La plaque est entourée d'un anneau de garde constitué par quatre autres plaques de même format et de même épaisseur, qui supprime les déformations des bords produites par la dissolution plus rapide des sels d'argent. Pour éviter tout glissement de l'émulsion, la plaque est maintenue horizontale et immobile, et c'est le courant du liquide qui produit l'agitation mécanique nécessaire pour réduire la durée du fixage.

La phase de fixage est considérée comme terminée au moment où la plaque est devenue translucide sur toute sa surface, mais elle est complétée par la dilution du fixateur pour éviter le gonflement important et rapide de l'émulsion produit par une immersion directe dans l'eau de lavage.

6. LAVAGE. — Pendant la première moitié de cette phase, la dilution du fixateur s'opère progressivement au moyen de trois cuves d'eau à 5° C. Le volume de la solution de thiosulfate est d'abord réduit dans la cuvette contenant la plaque, à 1000 cm³. La cuve de réserve du fixateur est alors remplacée par une première cuve d'eau distillée. Le pompage est rétabli et la concentration de la solution passe ainsi progressivement de 40/100ᵉ à 13/100ᵉ, avec un pH de 5,6.

La même opération est renouvelée successivement avec les deux autres cuves d'eau distillée. Après la deuxième dilution, la solution passe à un pH de 5,9 et à une concentration de 4/100ᵉ et après la troisième dilution, le pH est de 6,3 et la concentration n'est plus que de 1/100ᵉ.

La température en fin de dilution est élevée lentement à 10° C. La cuvette contenant la plaque est alors transférée au lavage à l'eau courante de pH 7,3 pendant une durée égale à celle de la dilution.

L'élimination totale du thiosulfate de sodium est contrôlée par un test avec un réactif au permanganate de potassium.

7. SÉCHAGE. — Avant le séchage, la plaque et l'anneau de garde sont plongés dans une solution de glycérine à 5/100ᵉ à la température finale de lavage, pour empêcher le décollement de l'émulsion au cours du séchage et réduire la distorsion. Ces plaques sont ensuite égouttées soigneusement et la face verre est essuyée avec un papier absorbant. La plaque traitée est alors placée sur le plateau de verre du four infrarouge, entourée de son anneau de garde, en s'assurant du bon contact des bords de l'émulsion. Cela est indispensable pour éviter la distorsion produite par la contraction trop rapide des bords. Cet effet des bords est complètement supprimé si, au cours du séchage, l'émulsion de la plaque se soude à celle de l'anneau de garde. Les ouvertures du four sont d'abord fermées pour commencer le séchage à hygrométrie constante et pour éviter tout dépôt de poussières à la surface de l'émulsion. Le rhéostat de la lampe infrarouge doit être réglé pour que la température de l'enceinte ne dépasse pas 30° C afin d'assurer un séchage lent et éviter le ramollissement de la gélatine. Lorsque la contraction de la plaque est suffisante, le séchage est terminé en ouvrant les auvents, la cheminée et en accélérant les courants de convection par le ventilateur. L'humidité ambiante est ainsi réduite à 50/100ᵉ environ.

C. **Résultats du traitement.** — Les différentes phases précédentes ont une durée qui, en fonction de l'épaisseur de l'émulsion, est précisée dans le tableau ci-dessous :

Épaisseur (μ)	100	200	300	400	500	600	700	800	900	1000
Prétrempage (mn)	10	20	30	50	80	120	180	300	420	540
Trempage (mn)	10	20	30	50	80	120	180	300	420	540
Développement (mn)	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30
Arrêt (mn)	10	20	30	50	80	120	180	300	420	540
Fixage (h)	2	6	15	30	45	60	75	90	105	120
Lavage (h)	2	6	15	30	45	60	75	90	105	120
Séchage (h)	2	6	15	30	45	60	75	90	105	120

L'amélioration apportée par ce traitement a été contrôlée par la mesure d'un coefficient de distorsion défini précédemment par Cosyns et Vanderhaeghe [7]. La déformation constatée sur les traces voisines du minimum d'ionisation et traversant l'émulsion dans toute son épaisseur se traduit par une courbure générale sensiblement constante mesurée par un vecteur distorsion **K**. Le coefficient de distorsion K caractérisant une émulsion d'épaisseur donnée, étant proportionnel au carré de cette épaisseur e, il est préférable de comparer les différentes plaques par le coefficient de distorsion spécifique

$$k = \frac{K}{e^2}.$$

Avec le premier procédé de développement en température, aucune précaution n'était prise pour réduire la déformation de l'émulsion qui se traduisait, en exprimant K en microns et e en millimètres, par une valeur de k de l'ordre de 500 à 1000.

Actuellement, le nouveau traitement des plaques permet de réduire la courbure des traces à $k = 50$, valeur susceptible d'être encore diminuée par des améliorations de détails.

Conclusion. — Ce traitement, qui nous a permis d'obtenir des résultats satisfaisants avec des plaques nucléaires Ilford de type G 5, est cependant applicable aux autres types.

Son extension à des émulsions supérieures à 1 mm est possible, mais l'exploration en profondeur des couches photographiques est actuellement limitée, d'une part, par la distance frontale des objectifs microscopiques à immersion, d'autre part, par le coefficient de transparence des couches épaisses qui diminue avec l'accumulation des grains d'argent.

Je tiens à remercier M. le Professeur Thibaud de sa précieuse direction et de la mise à ma disposition de tous les moyens techniques nécessaires à mes travaux.

Manuscrit reçu le 5 novembre 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] YAGODA. — Radioactive Measurements with Nuclear Emulsions, 1949, p. 59-63.

[2] DILWORTH, OCCHIALINI et PAYNE. — *Nature*, 1948, **162**, 102.

[3] DAINTON, GATTIKER et LOCK. — *Phil. Mag.*, 1951, **327**, 396.

[4] DILWORTH, OCCHIALINI et VERMAESEN. — *Bull. Centre Phys. Nucl. Univ. libre Bruxelles*, 1950, n° **13** *a*.

[5] BONETTI, DILWORTH et OCCHIALINI. — *Bull. Centre Phys. Nucl. Univ. libre Bruxelles*, 1951, n° **13** *b*.

[6] HERZ. — *J. Sc. Instr.*, 1952, n° **2**, 60.

[7] COSYNS et VANDERHAEGHE. — *Bull. Centre Phys. Nucl. Univ. libre Bruxelles*, 1951, n° **15**.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM. TOME 14, JANVIER 1953, PAGE 46.

DISPOSITIF POUR LA MESURE DU NIVEAU D'EAU LOURDE DANS LE RÉACTEUR DE SACLAY [1]. GÉNÉRALISATION A LA MESURE DES NIVEAUX LIQUIDES ET DES ÉPAISSEURS MÉTALLIQUES

Par J. WEILL et M. BRIÈRE.

Commissariat à l'Énergie atomique. Division des Constructions électriques.

Sommaire. — On décrit un appareillage qui effectue à distance la mesure et l'enregistrement d'un niveau liquide susceptible de varier de plusieurs mètres. La précision peut atteindre quelques dixièmes de millimètres. L'appareillage est entièrement automatique.

Dans de nombreuses études relatives aux piles atomiques, il apparaît nécessaire de connaître le niveau de l'eau lourde avec une précision d'une fraction de millimètre.

Un indicateur de niveau du type habituel, basé sur le principe des vases communicants, ne permet pas de fournir une telle précision. En effet, comme l'eau contenue dans le tube de niveau et l'eau de la cuve se trouvent la plupart du temps à des températures différentes, il peut en résulter (dans les conditions de fonctionnement constatées sur Zoé ou prévues dans P_2) des différences de l'ordre du centimètre entre le niveau indiqué et le niveau existant dans la cuve. En outre, un tel système ne se prête guère à la transmission d'indications à longue distance, ni à l'enregistrement.

Nous indiquerons ici quelques procédés que nous avons essayés en vue d'obtenir des mesures de niveau par des moyens électriques et décrirons un dispositif que nous avons réalisé au C. E. A. permettant l'indication et l'enregistrement à distance du niveau d'eau lourde, dans la Pile de Saclay.

Désirant nous affranchir de tout dispositif mécanique, nous avons tout d'abord tenté de résoudre le problème par des procédés purement électriques, basés sur la conductibilité et la constante diélectrique de l'eau lourde. Nous avons ainsi envisagé plusieurs systèmes dont le principe consistait à mesurer la résistance électrique ou la capacité entre des conducteurs immergés, ou encore à utiliser un oscillateur à ondes centimétriques constitué par une ligne de Lecher plongée dans l'eau et à déterminer le niveau d'après les variations de fréquences produites.

L'expérience nous a montré qu'il fallait renoncer à des systèmes de ce genre, qui sont basés sur les propriétés électriques de l'eau, en particulier en raison des variations de celles-ci avec la température et à la présence de phénomènes tels que la formation de bulles gazeuses sur les électrodes, qui viennent modifier les conditions électriques des circuits (les bulles modifiant la résistance *du circuit* et non pas la résistivité de l'eau.)

Nous avons donc été dans l'obligation de revenir à des dispositifs comportant un intermédiaire mécanique.

Parmi de nombreux systèmes qui peuvent être imaginés, un des plus simples est constitué par un fil résistant tendu verticalement dans la cuve et sur lequel se déplace un curseur mû par un flotteur. La mesure de niveau est ainsi ramenée à une mesure de résistance.

[1] Ce dispositif a fait l'objet d'une demande de brevet déposée le 23 juin 1950 sous le n° 592-693.

Un tel système est simple et robuste.

Toutefois, sous cette forme rudimentaire, celui-ci est inutilisable pratiquement pour l'application que nous avons en vue; pour deux raisons :

1° Pour obtenir la précision de mesure désirée, il faudrait pouvoir discerner nettement une variation de résistance correspondant à une fraction de millimètre du fil. Or, une telle variation de résistance n'est pas facilement mesurable, étant de l'ordre de grandeur des résistances de contact du curseur, sinon moindre.

2° De toute façon, une variation de niveau d'une fraction de millimètre ne communique pas au flotteur une force ascensionnelle suffisante pour vaincre les résistances de frottement et mouvoir le curseur.

On peut donc dire que le système manque de sensibilité, électriquement et mécaniquement, pour la précision de mesure que l'on demande.

Pour lui donner la sensibilité nécessaire, il faudrait lui adjoindre deux perfectionnements :

1° Faire en sorte qu'une variation de niveau d'une fraction de millimètre se traduise par une variation de résistance nettement mesurable;

2° Utiliser une force motrice auxiliaire pour mouvoir le curseur.

Nous présentons ici un système que nous avons mis au point et dans lequel ces deux principes sont mis en application.

Description. — Un fil d'acier « Invar » de 15/100 lesté par un plomb de sonde est enroulé sur un tambour entraîné par un petit moteur. Le tambour et le fil sont isolés de la masse et le plomb de sonde est terminé par une pointe de platine qui établit le contact avec l'eau dès qu'elle touche la surface.

Un dispositif électronique (*fig.* 1) très simple, établit entre la position de la pointe et le sens de rotation du tambour, une relation telle que, lorsque le contact avec l'eau est établi, la pointe tend à monter et lorsque le contact est rompu, la pointe tend à descendre. Il en résulte un battement périodique de la pointe dans le sens vertical d'environ 0,1 mm d'amplitude, de part et d'autre de la surface de l'eau (nous verrons plus loin que l'amplitude de ce battement est déterminée par des phénomènes de capillarité).

La longueur de fil déroulé dans la cuve et, par conséquent, la position angulaire du tambour, se trouvent donc fixées par le niveau de l'eau et ceci avec une grande précision.

La précision demandée sur la mesure de la hauteur de la surface de l'eau est de 0,5 mm; d'autre part, l'amplitude maxima de la variation de cette hauteur est de 2 m. Il en résulte que nous serions amenés à effectuer des mesures avec une précision de 0,025 pour 100 environ s'il n'y avait qu'une seule échelle de mesure.

Pour pallier cette difficulté, l'étendue totale de mesure a été divisée en 20 sections de 10 cm et la mesure répartie en deux opérations :

a. Mesure de précision dans une étendue de 10 cm;
b. Définition de la section dont il s'agit.

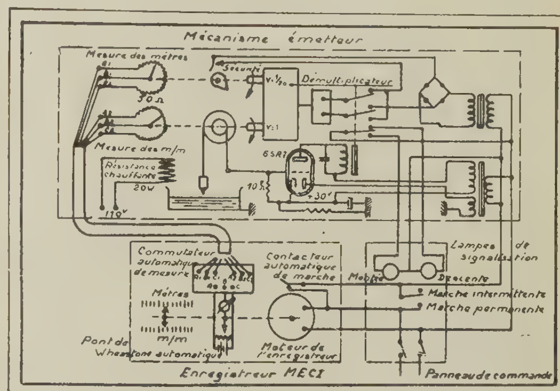


Fig. 1. — Schéma général du dispositif.

A cet effet, l'émetteur (*fig.* 2) comprend un tambour fileté qui comporte 20 gorges d'enroulement du fil. Le diamètre du tambour est tel que chaque gorge contient exactement le logement de 10 cm de fil. Le tambour permet ainsi l'enroulement de 2 m de fil.

Sur le même axe est monté un potentiomètre

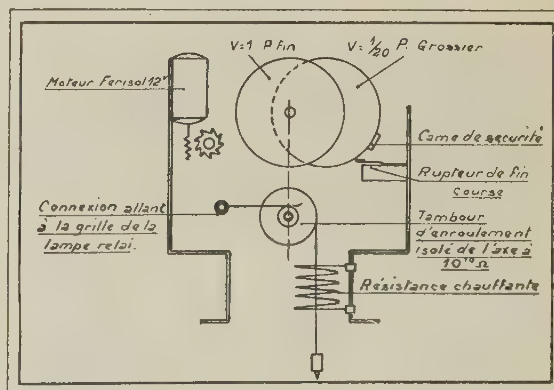


Fig. 2. — Mécanisme émetteur.

a. Disposition des organes; *b.* Vue d'ensemble.

de 13 cm de diamètre, tournant contre un curseur fixe et dont le bobinage occupe pratiquement les 360° de la circonférence, ce qui représente 40 cm de bobinage.

Le déroulement de 10 cm de fil correspond ainsi à un tour complet du potentiomètre, c'est-à-dire qu'une différence de niveau de 1 mm correspond à 4 mm de bobinage du potentiomètre. Ceci permet

une mesure précise du niveau dans une étendue de 10 cm et constitue le dispositif « fin » de mesure.

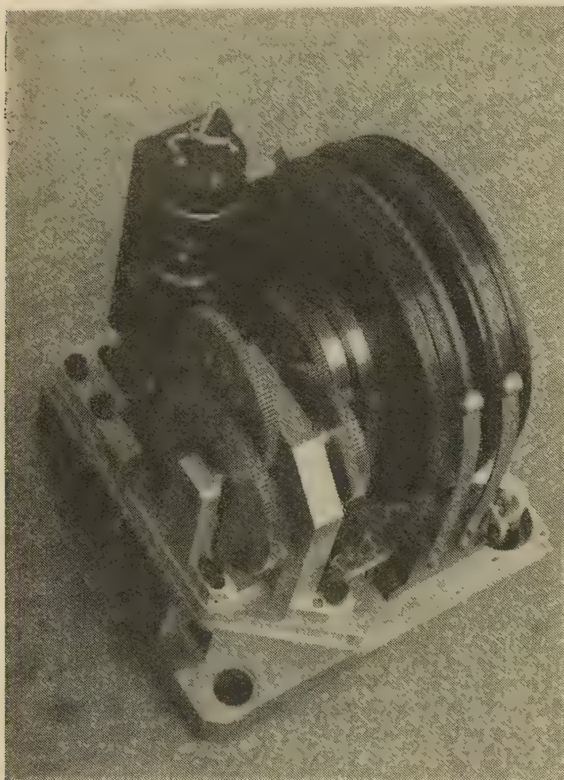


Fig 3. — Dispositif émetteur.

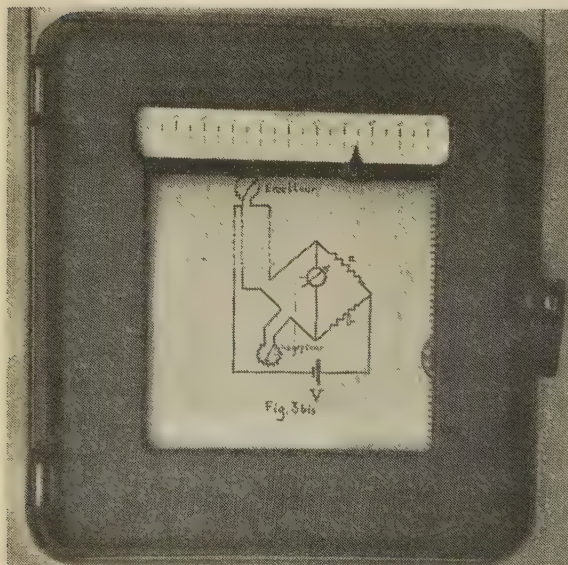


Fig. 3 *bis*. — Enregistreur récepteur et schéma du pont.

Par suite de cette disposition, on retrouve évidemment les mêmes mesures de 10 en 10 cm. Pour savoir de quelle décade il s'agit, un second potentiomètre identique est monté sur un axe démultiplié au vingtième par rapport à l'axe précédent, de sorte que sa rotation complète correspond à un dévidement de 2 m de fil. Ce potentiomètre constitue le dispositif « grossier » de mesure.

Les mesures de résistance sont effectuées automatiquement par un appareil indicateur-enregistreur (*fig.* 3; fournisseur, M. E. C. I.) à deux voies qui commute tour à tour le circuit de mesure sur le potentiomètre « grossier », puis sur le potentiomètre « fin ». Le montage est prévu de telle sorte que les résistances des fils de ligne de liaison se neutralisent (*fig.* 3 *bis*), ce qui permet de placer l'enregistreur à une distance pratiquement illimitée de la pile sans introduire d'erreur par suite de la résistance de la ligne. L'appareil est muni de deux échelles « mètres » et « millimètres », ce qui permet une lecture directe et instantanée du niveau. En même temps, l'appareil assure un enregistrement permanent de la hauteur d'eau sous forme de deux courbes de couleur différente.

L'enregistreur, situé sur le tableau de commande de la pile, fonctionne en permanence, mais, afin de ne pas fatiguer inutilement le mécanisme « émetteur » (qui est placé dans la pile et dont l'accès est, par conséquent, condamné), une marche intermittente a été prévue. Un contact automatique actionné par l'enregistreur met le mécanisme sous tension toutes les demi-heures pendant 2 minutes. Le système effectue ainsi une mesure du niveau toutes les demi-heures, ce qui est largement suffisant pour les besoins courants.

Le relais qui commande le sens de rotation du tambour commande également deux lampes de signalisation indiquées « montée » et «descente ». Le clignotement incessant de ces lampes indique que le niveau est stable et que la pointe oscille autour de la surface de l'eau. En cas de montée ou de descente du niveau, le système suit le mouvement de l'eau, ce qui entraîne la fixité de la lampe correspondante et l'extinction de l'autre.

Un rupteur en fin de course, actionné par une came montée sur l'axe du potentiomètre « grossier », coupe l'alimentation du moteur par mesure de sécurité au cas où, par suite d'une panne des circuits électroniques, le moteur continuerait indûment sa course dans un sens ou dans l'autre.

Enfin, pour éviter la condensation de vapeur d'eau dans le mécanisme émetteur, une résistance chauffante maintient en permanence l'enceinte dans laquelle est monté le mécanisme à une température supérieure à celle de la cuve.

Précision des mesures. — Le bobinage du potentiomètre « fin » comportant trois spires au millimètre et 1 mm de différence de niveau correspondant à 4 mm de bobinage, soit, à 12 spires, le

système possède un pouvoir de définition capable de fournir le dixième de millimètre.

L'enregistreur M. E. C. I. permet des mesures à mieux que 0,3 pour 100 de précision.

D'autre part, afin d'éviter les erreurs dues aux variations de température, le fil de sonde et le tambour d'enroulement sont en acier Invar, de sorte que la variation de la longueur totale du fil pour des variations de température de 100° est inférieure à 0,2 mm.

Une dernière cause d'erreur à examiner réside dans la plage d'incertitude créée par le battement de la pointe à la surface de l'eau. L'amplitude de ces battements est déterminée, non pas comme on pourrait le croire par l'inertie mécanique du système (celui-ci étant très démultiplié), mais par les phénomènes de capillarité au contact de la pointe avec la surface de l'eau (*fig.* 4). En utilisant une pointe très

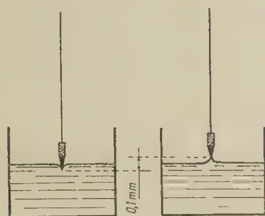


Fig. 4. — Plage d'incertitude causée par l'effet de capillarité.

fine en platine, la plage d'incertitude peut être réduite à environ 0,1 mm.

On voit que les erreurs susceptibles de se présenter ne dépassent pas le quart de millimètre.

L'appareil fournit donc largement la précision de mesure demandée de ± 0,5 mm.

Généralisation du procédé. — Le système que nous venons de décrire a été conçu spécialement pour la mesure du niveau d'eau lourde dans la cuve du réacteur de Saclay. Il va sans dire que ce système pourra être utilisé pour de nombreuses autres applications, en particulier dans tous les cas où il s'agira de mesurer un niveau liquide difficilement accessible ou dont il sera intéressant d'effectuer la mesure ou l'enregistrement à distance.

Dans le cas de liquides très isolants (résistance de contact supérieure à $10^{10}\ \Omega$) tels que certains carburants, il serait nécessaire de prévoir un flotteur métallique relié à la masse afin de créer un niveau conducteur artificiel (à noter au sujet des carburants qu'il n'y a pas à craindre de danger d'explosion du fait du contact électrique du flotteur avec la pointe, celui-ci n'intéressant que des courants toujours inférieurs au microampère).

Une autre application possible est la mesure de précision d'épaisseurs métalliques. En effet, lorsque, au lieu de se faire avec un niveau liquide, le contact de la pointe se fait avec une surface métallique, les battements deviennent très rapides et leur amplitude extrêmement faible. En réduisant le diamètre du tambour d'enroulement du fil de sonde, ce qui augmente le pouvoir de définition du système, on peut arriver facilement à une précision de mesure de l'ordre du centième de millimètre et ceci pour des pièces dont l'épaisseur totale peut être de plusieurs dizaines de centimètres.

Manuscrit reçu le 22 juillet 1952.

EXPOSÉS ET MISES AU POINT BIBLIOGRAPHIQUES

ÉTUDE DES PHOTODÉSINTÉGRATIONS.
I. APERÇU HISTORIQUE ET BIBLIOGRAPHIQUE DE L'ÉTUDE DES PHOTODÉSINTÉGRATIONS (1)

Par RAYMOND CHASTEL.
Laboratoire de Chimie nucléaire, Collège de France.

Sommaire. — L'évolution historique de l'étude des photodésintégrations est retracée en liaison avec les possibilités d'utilisation des sources de rayonnement γ, successivement disponibles (radioéléments naturels, rayonnements de désintégrations, spectres de freinage d'électrons). Le développement de ce domaine de la physique nucléaire apparait étroitement lié à l'accroissement des moyens scientifiques et techniques utilisés.

La première réaction photonucléaire a été mise en évidence par Chadwick et Goldhaber [1] en 1934. Raisonnant par analogie avec ce qui a lieu dans l'effet photoélectrique des atomes, ils prévoient la possibilité d'émission de particules nucléaires en soumettant les noyaux à des rayons γ d'énergie quantique supérieure à l'énergie de liaison de la particule dont l'expulsion est envisagée.

Les rayons γ les plus énergiques dont on dispose à l'époque étant ceux du ThC'' de 2,62 MeV, ils envisagent la possibilité d'observation de ce phénomène pour les noyaux ayant un défaut de masse faible ou négatif; ce qui est le cas du deutérium ${}^2_1$D (qu'ils appelaient à l'époque diplon), du beryllium ${}^9_4$Be et des noyaux radioactifs α. Effectivement, irradiant dans une chambre d'ionisation du deutérium par les rayons γ du ThC'', ils observent les impulsions résultant de l'ionisation produite par les protons émis. Ils écrivent la réaction



$${}^2_1\mathrm{D} + h\nu = {}^1_1\mathrm{H} + {}^1_0n + Q.$$

Comme ils n'observent pratiquement pas d'impulsions avec les rayons γ du RaC de 1,8 MeV (en réalité, on a reconnu plus tard qu'il existait des raies γ d'énergie plus grande, mais ces raies ont une très faible intensité), ils en déduisent que le seuil de la réaction est compris entre 1,8 et 2,62 MeV, les mesures des masses exactes de l'hydrogène et du deutérium leur permettent d'obtenir une limite inférieure pour la masse du neutron égale à 1,0077. Une mesure assez grossière de l'énergie des protons produits leur donne une valeur de la masse m_n du neutron égale à $1{,}0080 \pm 0{,}0005$, d'après les équations

$$m_n = ({}^2_1\mathrm{D} - {}^1_1\mathrm{H}) + 2{,}62 - E_{\mathrm{cin}},$$
$$E_{\mathrm{cin}} = 2E_{\mathrm{H}} \qquad (E_{\mathrm{H}},\ \text{énergie du proton}).$$

(1) La bibliographie contenue dans cette première partie va jusqu'à juillet 1951.

Ceci en admettant qu'il n'y avait pas de rayon γ émis au cours de la désintégration. En effet, le neutron ou le proton ou les deux auraient pu se trouver émis à un état excité ou un quantum γ pouvait être émis dans le processus de photodésintégration. Ce rayonnement qu'à l'époque on ne pouvait pas exclure *a priori* aurait été difficile à détecter expérimentalement parmi le rayonnement γ de ThC'' provoquant la réaction. Aujourd'hui encore, de telles expériences de détection de rayonnement γ émis au cours de désintégration résultant de rayons γ primaires sont très difficiles.

La masse adoptée à l'époque pour le proton est $m_{\mathrm{H}} = 1{,}0078$; la valeur résultant de cette expérience de Chadwick et Goldhaber ne leur permet pas de voir nettement si la masse du neutron est supérieure à celle du proton.

En effet, Chadwick [2] avait donné $m_n = 1{,}0068$ et I. Curie et F. Joliot [2 *a*] avaient donné antérieurement à la découverte de l'effet photonucléaire des déterminations de la masse du neutron résultant de leurs mesures d'énergie des neutrons dans diverses réactions et des déterminations des maxima énergétiques des spectres β [2 *b*], [2 *c*], [2 *d*], [2 *e*], ils indiquaient les valeurs 1,0098, 1,0092, 1,0089 et ils précisaient que le premier nombre était le plus précis (la masse actuellement admise [2 *f*] est $m_n = 1{,}00893 \pm 0{,}00003$). Et ils donnaient comme résultat de leurs expériences :

$$m_n = 1{,}010 \pm 0{,}0005,$$

valeur nettement supérieure à celle de la masse du proton. Ceci avait une conséquence importante : le neutron devait être instable et dans leur publication à *Nature* [2 *a*] (12 mai 1934), ils indiquent que la radioactivité β^- doit être le résultat de la transformation d'un neutron en proton; ils écrivent

$$\text{neutron} \rightarrow \text{proton} + \varepsilon^- + Q, \qquad \text{avec} \quad Q = 2{,}1\ \mathrm{MeV}.$$

Dans la même publication, ils calculent l'énergie absorbée par la transformation inverse

$$\text{proton} \rightarrow \text{neutron} + \varepsilon^{+} - Q', \qquad \text{avec} \quad Q' = 3{,}1\,\text{MeV}.$$

La radioactivité du neutron a été effectivement observée et sa période semble comprise entre 8 et 30 mn [3].

Les mesures de Chadwick et Goldhaber fournissent une valeur de la section efficace de la réaction $^{2}_{1}D(\gamma, n)^{1}_{1}H$ de $10^{-28}\,cm^2$ en assez bon accord avec la valeur calculée théoriquement par Bethe et Peierls [4].

C'est la première fois qu'un noyau est désintégré sous l'action de radiations électromagnétiques, auparavant, en effet, toutes les désintégrations étaient provoquées par des rayonnements corpusculaires.

Reprenant leur première expérience, Chadwick et Goldhaber [4 *a*], avec un dispositif expérimental amélioré, confirment les résultats de I. Curie et F. Joliot et donnent pour la masse du neutron les valeurs $m_n = 1{,}0084$ (avec la masse du deuton de Oliphant et Kempton) et $m_n = 1{,}0090$ (en utilisant la masse du deuton d'Aston). La masse du proton qu'ils utilisent pour cette publication est $m_H = 1{,}0081$. Il est donc définitivement confirmé que le neutron est plus lourd que le proton.

Quelques semaines plus tard, Szilard et Chalmers [5] observaient la photodésintégration du beryllium irradié par les rayons γ du radium. Ils détectaient la réaction par l'action des neutrons libérés sur l'iode. L'iode ^{128}I se transformant en iode radioactif ^{127}I de période 24,99 mn par capture d'un neutron. Cet iode actif étant séparé de l'iode inactif par la méthode suivante imaginée peu de temps avant par ces auteurs et qui porte leur nom : l'iode utilisé comme détecteur de neutron est engagé dans un composé organique; le noyau composé ^{128}I brise sa liaison chimique sous l'effet du recul produit lors de l'émission du rayonnement γ de désexcitation; les atomes d'iode formés peuvent être séparés d'une grande masse de composé organique iodé, on les entraîne par une très faible quantité d'un iodure à l'état ionique. Ce processus constitue un moyen très sensible de détection des neutrons.

Depuis la découverte de la photodésintégration du deutéron, le nombre d'expériences sur l'effet photonucléaire est allé en croissant sans cesse. Nous allons très brièvement retracer l'historique de ces études; trois articles généraux donnent une vue d'ensemble plus ou moins complète du développement de ce domaine de la physique nucléaire, ce sont ceux d'Averbach [6], de Bosley et Craggs [7] et de Koklov [8]; enfin, de nombreux articles comportent de brefs aperçus historiques.

Il est possible de distinguer trois périodes dans le développement des études sur l'effet photonucléaire : la première période de sa découverte à 1937 au cours de laquelle les photodésintégrations sont provoquées par les rayons γ des radioéléments naturels; pendant la deuxième période, de 1937 à 1941 environ, on développe l'utilisation de rayons γ produits au cours de réactions nucléaires; enfin la dernière période, de 1945 à l'heure actuelle, a pour point de départ l'utilisation de rayons X produits par les nouveaux accélérateurs d'électrons (bétatrons et synchrotrons).

Précisons qu'au point de vue du vocabulaire utilisé on désigne habituellement par rayons γ les radiations électromagnétiques émises par des noyaux excités, qu'il s'agisse de noyaux radioactifs naturels ou artificiels ou de noyaux composés formés au cours de réactions nucléaires et l'on réserve le terme de rayons X à des radiations électromagnétiques produites à l'extérieur du noyau à l'aide, par exemple, d'électrons accélérés artificiellement.

Les étapes de cette évolution sont étroitement liées à l'accroissement des moyens techniques mis en œuvre. Il faut remarquer qu'elles correspondent au cours du temps à l'utilisation d'énergies quantiques de plus en plus élevées : l'énergie maximum utilisée pendant la première période est de 2,62 MeV (rayons γ du ThC''); au cours de la deuxième période, les radiations les plus énergiques utilisées sont celles de 17,6 MeV résultant du bombardement du lithium par les protons; enfin, dans la période actuelle, les synchrotrons fournissent des rayons X dont les énergies vont jusqu'à 320 MeV [9]. Parallèlement, le nombre des noyaux désintégrés par effet photonucléaire et le nombre de types de réactions photonucléaires s'est accru dans des proportions considérables. Les rayons γ du ThC'' ont permis seulement la photodésintégration de deux noyaux, deutérium et beryllium; de 1937 à 1941, il devient possible de produire l'effet photonucléaire de la plupart des noyaux et, cependant, trois types de réactions sont seuls étudiés : réactions (γ, n), réactions (γ, p), et photofissions; enfin, depuis l'utilisation des bétatrons, non seulement tous les noyaux peuvent être photodésintégrés, mais ils peuvent l'être d'un très grand nombre de manières comportant l'expulsion d'une seule particule ou d'un très grand nombre de particules avec toutes les gammes intermédiaires.

Première période : utilisation des rayons γ émis par les radioéléments naturels. — Les expériences de la première période sur $^{2}_{1}D$ et $^{9}_{4}Be$ ont été extrêmement nombreuses et elles ont continué à faire l'objet jusqu'à l'heure actuelle d'un très grand nombre de publications; nous n'en parlerons qu'occasionnellement au cours de cet exposé, car leur étude quelque peu complète nécessiterait des développements trop importants. Nous nous bornerons à dire que ces expériences ont essentiellement pour but : la détermination avec une précision croissante du seuil des réactions, la détermination des sections efficaces et de leur variation en fonction de l'énergie γ, l'étude de la distribution angulaire des particules émises.

En ce qui concerne plus particulièrement la photodésintégration du deuton, ces renseignements ont une importance de premier plan, en effet, le deuton est le plus simple des systèmes nucléaires. Le rôle du deuton dans la théorie nucléaire correspond au rôle de l'hydrogène dans la théorie atomique. Enfin, le deuton étant constitué par deux particules seulement, un neutron et un proton, le problème théorique est relativement simple, le calcul peut être mené jusqu'au bout.

Deuxième période : utilisation des rayons γ produits dans les désintégrations nucléaires. — *a*. RÉACTION (γ, n). — Dans les désintégrations

nucléaires produites par des particules accélérées, il se produit des rayons γ d'énergie plus grande que ceux fournis par les sources de radioéléments naturels. Les plus intéressants de ces rayonnements γ sont ceux résultant de la capture de protons par les noyaux de différentes cibles. Les progrès réalisés dans la technique des accélérateurs de particules vont permettre d'utiliser ces rayons γ pour irradier de nouveaux éléments et rechercher d'autres effets photonucléaires. Les rayons γ les plus énergiques obtenus par cette méthode sont ceux de 17,6 MeV résultant de la capture d'un proton par ${}^{7}_{3}Li$ [10], [11], cette réaction présentant une résonance pour une énergie des protons de 440 keV. Bothe et Gentner [12], soumettant à ce rayonnement un grand nombre d'éléments, mettent en évidence la photodésintégration de dix nouveaux corps : phosphore, cuivre, zinc, gallium, brome, molybdène, argent, indium, antimoine et tellure. Ils détectent ces photodésintégrations (γ, n) par observation de la radioactivité du noyau résiduel. Le meilleur rendement est obtenu avec le cuivre, qui subit la réaction ${}^{63}Cu$ (γ, n) ${}^{62}Cu$ dont ils déterminent la section efficace $\sigma = 5.10^{-26}$ cm². Chang, Goldhaber et Sagane [13] confirment les photodésintégrations observées par Bothe et Gentner et observent, en outre, la photodésintégration de l'oxygène. Continuant leurs expériences, Bothe et Gentner [14] publient les intensités relatives des effets photonucléaires produits par les rayons γ du lithium (17,6 MeV) et du bore (12,8 MeV) et donnent la section efficace de la réaction (γ, n) sur le cuivre provoquée par les rayons γ du bore, $\sigma = 2,2.10^{-26}$ cm². Carlson et Henderson [15] disposant d'un accélérateur dont la source est capable de donner un faisceau d'ions de 600 μA obtiennent une intensité de rayonnement γ sensiblement triple de celle de Bothe et Gentner, ils observent la photodésintégration du manganèse et du fer; cependant, les périodes des activités trouvées sont nettement en désaccord avec les périodes actuellement connues pour les nuclides produits.

Depuis leur découverte en 1934 par F. et I. Joliot-Curie [16], la connaissance des radioéléments artificiels ayant considérablement progressé, il devenait possible de prévoir les périodes résultant de nouvelles photodésintégrations recherchées, ce qui permettait de choisir à l'avance les durées d'irradiation convenables. Disposant, d'autre part, d'une intensité de rayonnement γ beaucoup plus grande que celle de Bothe et Gentner, les chercheurs de Zurich ont entrepris l'étude systématique de tous les éléments du tableau de Mendeleeff. Ces études font l'objet de nombreuses publications dans lesquelles un soin tout particulier est apporté à la correction résultant de l'activité parasite provoquée par les neutrons émis en même temps que les rayons γ [17] ([2]). Au cours de ces travaux, ils mettent en évidence un grand nombre de nouvelles réactions (γ, n) et ils donnent pour chacune la section efficace relative en utilisant comme référence la section efficace du cuivre. Leurs expériences permettent la détermination avec certitude des périodes comprises entre 3 s et 5 jours présentant un rendement égal au minimum à 1 pour 100 du rendement trouvé pour ${}^{63}Cu$. Un tableau d'ensemble de leurs résultats est publié en 1948 [18].

([2]) R. Chastel, *Thèse*, Paris, 1952.

b. Photofission. — Très tôt après la découverte de la fission de l'uranium [19], [20], [21], Roberts, Meyer et Hafstad [22] et Heyn, Aten et Bakker [23] publient d'infructueuses tentatives faites pour mettre en évidence la fission de l'uranium et du thorium sous l'action des rayons γ du lithium et du fluor. Haxby, Shoupp, Stephens et Wells [24] utilisant les rayons γ du fluor (6 MeV), réussissent à détecter la photofission de l'uranium et du thorium, les sections efficaces étant estimées à $\sigma_U = 3,5 \pm 1,0.10^{-27}$ cm² et $\sigma_{Th} = 1,7 \pm 0,5.10^{-27}$ cm². Une chambre d'ionisation et un amplificateur étaient utilisés pour détecter ces processus de fission; plusieurs tests étaient utilisés pour s'assurer que les phénomènes observés étaient réellement dus aux rayons γ et non aux neutrons.

L'étude des photofissions a été poursuivie au cours de la période suivante en utilisant, soit les radiations produites par des désintégrations, soit celles émises par les bétatrons et un certain nombre de résultats importants ont été obtenus [25].

Charbonnier, Scherrer, Wäeffler [26] à l'aide d'émulsions photographiques contenant une forte proportion d'uranium déterminent la section efficace de photofission de ${}^{238}U$ pour les rayons γ du lithium et donnent la valeur $\sigma = 4,6 \pm 1,5.10^{-26}$ cm².

La tripartition [27] de l'uranium et du thorium a pu être provoquée par les rayons γ et a également été détectée dans les émulsions photographiques [28], [29]; Goward, Titterton et Wilkins [30] ont observé la photofission de l'uranium avec émission d'un noyau de ${}^{8}_{4}Be$ instable qui se partage au cours de son expulsion en deux particules α, ce phénomène se présente donc sous l'apparence d'une quadripartition.

Baldwin et Klaiber [31] déterminent la courbe de variation de la section efficace de photofission de l'uranium en fonction de l'énergie des rayons γ, cette courbe présente un maximum de 6.10^{-26} cm² pour $E_\gamma = 16$ MeV.

Koch, Mc Elhinney et Gasteiger [32] donnent les seuils de photofission pour ${}^{235}_{92}U$, ${}^{238}_{92}U$, ${}^{233}_{92}U$, ${}^{239}_{94}Pu$, ${}^{232}_{90}Th$ et Sugarman [33] étudie la photofission du bismuth.

Ogle, Mc Elhinney [34] et Mc Elhinney et Ogle [35] étudient également cette variation pour plusieurs éléments.

Récemment, une publication [36] donne les rendements de fission et d'émission neutronique, ainsi que l'énergie moyenne des neutrons émis, pour la photodésintégration de l'uranium.

c. Réactions (γ, p). — En 1944, Huber, Lienhard, Scherrer et Waeffler [37] signalent une activité obtenue lors du bombardement du magnésium par les rayons γ du lithium et ils l'attribuent à la réaction ${}^{26}Mg$ (γ, p) ${}^{25}Na$; Hirzel et Waeffler [38] étudient les réactions (γ, p) provoquées sur les différents isotopes du silicium, du titane, du chrome, du sélénium, du molybdène, du palladium, du cadmium et du zinc. Ils déterminent les sections efficaces relatives par rapport à la section efficace de la réac-

tion $^{63}_{29}Cu(\gamma, n)\,^{62}_{29}Cu$. Ils comparent ces sections efficaces aux sections efficaces (γ, p) et montrent que les réactions (γ, p) ont une probabilité beaucoup plus grande que celle prévue par la théorie des évaporations nucléaires.

Ces études des réactions (γ, p) ont été faites en mesurant l'activité des noyaux finaux, il en résulte que seules les réactions produisant des noyaux radioactifs sont susceptibles d'être étudiées de cette façon.

Pour de très nombreux éléments, l'émission photonucléaire d'un proton conduit à des isotopes stables, l'élaboration d'une méthode d'étude de ces réactions apparaissait comme grandement souhaitable, l'utilisation de la technique des émulsions photographiques dans ce but a permis de mettre en évidence l'effet photonucléaire avec émission d'un proton dans le cas du cuivre [39].

Des efforts dans ce sens ont été faits indépendamment et Toms, Halpern et Stephens [40] ont publié une courte Note concernant l'observation dans l'émulsion photographique de photoprotons émis par le magnésium irradié par le rayonnement de freinage d'un bétatron de 22,5 MeV; dans ce cas particulier, deux des isotopes du Mg, ^{25}Mg et ^{26}Mg, conduisent à des isotopes radioactifs, ce qui permet un contrôle de ces réactions (γ, p) par mesure de l'activité induite. Plus tard, Toms et Stephens ont publié [41] une étude plus détaillée de ces expériences.

Récemment, Byerly et Stephens [42] viennent de donner les résultats d'une étude des photoprotons émis par le cuivre.

Enfin, Mann et Halpern [43] utilisant également le rayonnement de freinage d'un bétatron, ont étudié avec une technique différente la production de photoprotons sur 20 éléments.

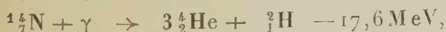
d. ÉTOILES DE PHOTODÉSINTÉGRATION DES NOYAUX LÉGERS DANS L'ÉMULSION PHOTOGRAPHIQUE. — Dans une plaque exposée au rayonnement γ du lithium, Hänni [44] avait observé des étoiles à trois branches; ces étoiles ont été attribuées à la photodésintégration du carbone en trois particules α [45]; Wäffler et Younis [46] ont donné une valeur de la section efficace de cette réaction $\sigma = 0{,}8 \pm 0{,}3\,.\,10^{-28}$ cm². Divers auteurs [47], [48], [49], [50], [51], ont étudié le mécanisme de cette réaction.

A l'aide d'un synchrotron, la photodésintégration de l'oxygène en quatre particules α a été observée également dans les émulsions photographiques [52], [53], [54]. Dans ces différentes désintégrations, on observe parfois une formation intermédiaire de $^{8}_{4}Be$ [55].

D'autres photodésintégrations d'éléments légers ont été détectées dans les plaques nucléaires, en particulier, sur l'azote [56], [57] :



$$^{14}_{7}N + \gamma \rightarrow \,^{6}_{3}Li + 2\,^{4}_{2}He - 16{,}1\ \text{MeV},$$



$$^{14}_{7}N + \gamma \rightarrow 3\,^{4}_{2}He + \,^{2}_{1}H - 17{,}6\ \text{MeV},$$

On a identifié les réactions suivantes sur le bore [58]:

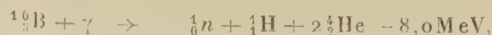


$$^{11}_{5}B + \gamma \rightarrow \,^{3}_{1}H + 2\,^{4}_{2}He - 11{,}1\ \text{MeV},$$



$$^{10}_{5}B + \gamma \rightarrow \,^{2}_{1}H + 2\,^{4}_{2}He - 5{,}8\ \text{MeV},$$

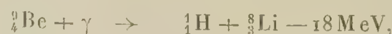
et la réaction



$$^{10}_{5}B + \gamma \rightarrow \,^{1}_{0}n + \,^{1}_{1}H + 2\,^{4}_{2}He - 8{,}0\ \text{MeV},$$

est considérée comme probable.

Dans le cas du beryllium, on a observé la réaction [59]



$$^{9}_{4}Be + \gamma \rightarrow \,^{1}_{1}H + \,^{8}_{3}Li - 18\ \text{MeV},$$

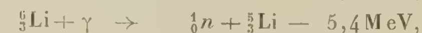
Enfin, sur le lithium, les réactions suivantes ont été mises en évidence [60], [61], [62] :



$$^{7}_{3}Li + \gamma \rightarrow \,^{4}_{2}He + \,^{3}_{1}H - 2{,}5\ \text{MeV},$$



$$^{7}_{3}Li + \gamma \rightarrow \,^{1}_{1}H + \,^{6}_{2}He - 10{,}1\ \text{MeV},$$



$$^{6}_{3}Li + \gamma \rightarrow \,^{1}_{0}n + \,^{5}_{3}Li - 5{,}4\ \text{MeV},$$



$$^{5}_{3}Li \rightarrow \,^{1}_{1}H + \,^{4}_{2}He + 1{,}6\ \text{MeV}.$$

Troisième période : utilisation des rayons X produits par les bétatrons et synchrotrons. — Les rayons γ résultant de désintégrations nucléaires permettaient exclusivement l'étude de photodésintégrations à des énergies γ fixes et discontinues, ils n'offraient pas la possibilité de faire varier de façon continue l'énergie quantique du rayonnement. A partir de 1941 environ, les nouveaux accélérateurs d'électrons de grande énergie, bétatrons et synchrotrons, donnent la possibilité d'utiliser des spectres continus des rayonnements de freinage des électrons. Ils présentent, en outre, l'avantage de permettre aisément une modification de l'énergie quantique du rayonnement émis. Cette dernière caractéristique rend possible la détermination des seuils des réactions photonucléaires. C'est ainsi que la première publication concernant les photodésintégrations produites par un bétatron, publiée par Baldwin et Koch en 1945 [63] donne les seuils d'un certain nombre de réactions (γ, n). Comme autre avantage des bétatrons et synchrotrons, il convient de souligner le fait qu'ils fournissent des intensités de radiations incomparablement plus grandes que les désintégrations nucléaires produites dans les accélérateurs de particules lourdes, au surplus le rayonnement présente la particularité intéressante d'être émis dans un cône étroit vers l'avant du faisceau d'électrons [64]; ces deux faits rendent possible l'étude de photodésintégrations à faible rendement et la canalisation soignée du faisceau de radiations.

Aux grandes énergies atteintes avec ces accélérateurs, à Berkeley, par exemple, un synchrotron de 322 MeV est actuellement en fonctionnement [65], l'expulsion d'un neutron ou d'un proton est également probable, mais encore le noyau résiduel est porté à une température suffisamment élevée pour évaporer plusieurs particules. Des désintégrations au cours desquelles six à huit particules nucléaires : neutrons, protons, particules α, etc. peuvent être émises, sont possibles avec une énergie d'excitation de 100 MeV. De telles désintégrations ont été observées dans le rayonnement cosmique dès 1938 [66]; nous ne traiterons pas, par ailleurs, de ces photodésintégrations produites par le rayonnement cosmique et nous laisserons également de côté les réactions photomésoniques.

La possession de radiations d'énergie et d'intensité contrôlables permet maintenant l'étude de ces désin-

tégrations nucléaires extrêmement variée aux grandes énergies. Il en résulte un accroissement considérable du nombre de photoréactions connues. C'est ainsi qu'en 1944 on en avait observé d'après la table de Seaborg [67] seulement 35; à l'heure actuelle, ce nombre est de l'ordre de quelques centaines.

Quoique aucune méthode pleinement satisfaisante n'existe pour étudier les désintégrations multiples, plusieurs techniques sont cependant utilisables.

Les traces des particules chargées émises peuvent être observées à l'appareil Wilson ou dans les émulsions photographiques. Leurs énergies respectives et leurs directions peuvent ainsi être obtenues. Cependant, ces méthodes ne permettent pas d'observer les neutrons émis dans la désintégration et donnent ainsi, une image incomplète du phénomène. En raison du mélange d'éléments présents dans le gaz de la chambre Wilson et dans l'émulsion, souvent, les éléments responsables de la réaction ne peuvent être identifiés sans difficultés et avec une absolue certitude.

Une autre méthode utilisable est l'observation de la radioactivité induite, méthode déjà grandement exploitée pour l'étude des réactions (γ, n) et (γ, p); elle permet la connaissance de l'élément initial et l'identification certaine de l'isotope produit, mais ne détecte pas les réactions conduisant à des noyaux stables, ainsi que nous l'avons signalé précédemment, elle ne permet pas de déterminer sans ambiguïté les types de particules émises.

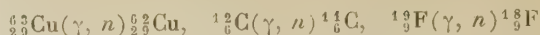
Toutefois, en raison des grandes intensités de rayonnement fournies par les accélérateurs d'électrons, il est possible de détecter directement les photoneutrons émis.

Ces diverses méthodes doivent donc être utilisées concouramment pour l'étude des photodésintégrations produisant un grand nombre de particules.

Une difficulté importante s'est présentée aux utilisateurs d'accélérateurs d'électrons, c'est la connaissance imparfaite de la forme du spectre continu des radiations émises. Les spectres diffèrent parfois notablement du spectre théorique facilement calculable dans le cas du freinage des électrons par une cible mince [68]. Sans entrer dans le détail des causes de ces divergences, signalons que les formes de ces spectres ont été étudiées, notamment à l'aide de photodésintégrations, en particulier dans les émulsions photographiques [69], [70]; les sections efficaces de ces photoréactions étant supposées vérifiées par d'autres méthodes. Nous avons là un bel exemple d'interdépendance réciproque entre différentes techniques.

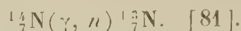
Compte tenu de ces possibilités et de ces défauts des accélérateurs d'électrons, de nombreuses déterminations de seuils photonucléaires ont été publiées [63], [71], [72], [73], [74], [75], [76], [77], [78], [79], [80].

De très nombreuses publications exposent des mesures de rendement photonucléaires, les valeurs données sont rapportées très fréquemment aux rendements des réactions :



$$^{63}_{29}\mathrm{Cu}(\gamma, n)^{62}_{29}\mathrm{Cu}, \quad ^{12}_{6}\mathrm{C}(\gamma, n)^{11}_{6}\mathrm{C}, \quad ^{19}_{9}\mathrm{F}(\gamma, n)^{18}_{9}\mathrm{F}$$

ou, quelquefois,



$$^{14}_{7}\mathrm{N}(\gamma, n)^{13}_{7}\mathrm{N}. \quad [81].$$

Dans certains cas, les courbes de variation du rendement en fonction de l'énergie des rayons γ (ou de la section efficace relative) sont obtenues. Ces courbes sont établies en faisant des hypothèses diverses sur la forme des spectres des bétatrons utilisés; malgré cette source d'incertitude plus ou moins importante suivant les publications, elles présentent un aspect caractéristique comportant une croissance rapide au-dessus du seuil suivie d'un maximum situé à des énergies quantiques variant entre 15 et 40 MeV suivant les noyaux considérés; la courbe décroît ensuite, il en résulte que le rendement total d'une photodésintégration considérée s'accroît peu lorsque l'on passe d'un spectre d'énergie maximum 50 MeV à un spectre d'énergie maximum 100 MeV [81], [82].

Cette forme de courbe d'excitation présentant une sorte de « résonance » était assez inattendue, elle a conduit à l'introduction d'une nouvelle définition du rendement d'une réaction photonucléaire : la section efficace intégrée

$$\sigma_{\text{int}} = \int_0^{\infty} \sigma(E)\,\mathrm{d}E,$$

l'unité généralement adoptée étant de 10^{-24} cm² MeV. Les résultats expérimentaux ont, d'autre part, conduit Goldhaber et Teller [83] à élaborer une théorie interprétant le phénomène. Cette théorie sera examinée plus en détail dans l'article suivant; disons seulement qu'elle prévoit une diffusion importante des rayons γ d'énergie voisine de celle de la « résonance ». Gaertner et Yeater [84] ont tenté de mesurer l'intensité de cette diffusion par résonance nucléaire, ils ont obtenu des résultats beaucoup plus petits que ce que Goldhaber et Teller ont prévu. Dressel et ses collaborateurs [85] ont également étudié cette diffusion par résonance nucléaire, ils ont trouvé une distribution angulaire de l'intensité diffusée sensiblement en accord avec la théorie.

Levinger et Bethe [86] donnent un travail théorique d'après lequel la diffusion par résonance nucléaire est un peu inférieure à celle de Goldhaber et Teller.

Les travaux de parution récente manifestent deux ordres principaux de préoccupations des expérimentateurs; d'une part, l'étude des spectres énergétiques et des distributions angulaires des particules émises; d'autre part, l'étude des photodésintégrations produites aux grandes énergies, comportant des particules émises directement, pratiquement en même temps que l'absorption du quantum, et des particules évaporées en des temps comparativement plus long par le noyau résiduel.

Manuscrit reçu le 23 septembre 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Chadwick et Goldhaber. — *Nature*, 1934, **134**, 237.

[2] Chadwick. — *Proc. Roy. Soc.*, 1939, **136**, 692.

[2 a] I. Curie et F. Joliot. — *Nature*, 1934, **133**, 721.
[2 b] I. Curie et F. Joliot. — *C. R. Acad. Sc.*, 1933, **196**, 397.
[2 c] I. Curie, F. Joliot et P. Savel. — *C. R. Acad. Sc.*, 1932, **194**, 2208.
[2 d] I. Curie et F. Joliot. — *Nature*, 1930, **130**, 692.
[2 e] I. Curie et F. Joliot. — *Nature*, 9 July 1932.
[2 f] Bethe. — Elem. Nucl. Theory, 1947.
[3] Snell, Pleasonton et Mc Cord. — *Phys. Rev.*, 1950, **78**, 310.
[4] Bethe et Peierls. — *Proc. Roy. Soc.*, 1935, A **148**, 146
[4 a] Chadwick et Goldhaber. — *Proc. Phys. Soc.*, 1935, A **151**, 479.
[5] Szilard et Chalmers. — *Nature*, 1934, **134**, 494.
[6] Averbach. — *Usp. Phys. Naouk*, 1948, **35-2**, 276.
[7] Bosley et Craggs. — Report on progress in physic. 1948-1949, vol. XII, 82.
[8] Koklov. — *Usp. Phys. Naouk*, 1950, **42**, 316.
[9] Kerst et Price. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 725.
[10] Delsasso, Fowler et Lauritsen. — *Phys. Rev.*, 1937, **51**, 391.
[11] Gaertner et Crane. — *Phys. Rev.*, 1937, **52**, 582.
[13] Chang, Goldhaber et Sagane. — *Nature*, 1937, **139**, 962.
[12] Bothe et Gentner. — *Z. Physik*, 1937, **106**, 236.
[14] Bothe et Gentner. — *Z. Physik*, 1939, **112**, 45.
[15] Carlson et Henderson. — *Phys. Rev.*, 1940, **58**, 193.
[16] I. et F. Joliot-Curie. — *C. R. Acad. Sc.*, 1934, **198**, 254.
[17] Huber, Lienhard, Scherrer et Waeffler. — *Helv. Phys. Acta.*, 1943, **16**, 33.
[18] Waffler et Hirzel. — *Helv. Phys. Acta*, 1948, **21**, 200.
[19] Hahn et Strassmann. — *Naturwiss.*, 1939, **27**, 11,
[20] Joliot. — *C. R. Acad. Sc.*, 1939, **208**, 341.
[21] Frisch. — *Nature*, 1939, **143**, 276.
[22] Roberts, Meyer et Hafstad. — *Phys. Rev.*, 1939, **55**, 417.
[23] Heyn, Aten et Bakker. — *Nature*, 1939, **157**, 90.
[24] Haxby, Shoupp, Stephens et Wells. — *Phys. Rev.*, 1941, **59**, 57.
[25] Huizenga, Magnusson, Fields, Studier et Duffield. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 561.
[26] Charbonnier, Scherrer et Waffler. — *Helv. Phys. Acta*, 1949, **22**, 385.
[27] Tsien, Chastel, Ho et Vigneron. — *C. R. Acad. Sc.*, 1946, **223**, 986.
[28] Titterton et Goward. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 142.
[29] Titterton et Brinkley. — *Phil. Mag.*, 1950, **41**, 500.
[30] Goward, Titterton et Wilkins. — *Nature*, 1949, **164**, 661.
[31] Baldwin et Klaiber. — *Phys. Rev.*, 1947, **70**, 259.
[32] Koch, Mc Elhinney et Gasteiger. — *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 329.
[33] Sugarman. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 532.
[34] Ogle et Mc Elhinney. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 344.
[35] Mc Elhinney et Ogle. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 342.
[36] Goward, Jones, Watson et Lees. — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, **64**, 95.
[37] Huber, Lienhard, Scherrer et Waeffler. — *Helv. Phys. Acta*, 1944, **17**, 139.
[38] Hirzel et Waeffler. — *Helv. Phys. Acta*, 1947, **20**, 373.
[39] Chastel. — *C. R. Acad. Sc.*, 1950, **230**, 2020.
[40] Toms, Halpern et Stephens. — *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1949, **7**, 22.
[41] Toms et Stephens. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 709.
[42] Beyerly et Stephens. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 473.
[43] Mann et Halpern. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 733.
[44] Haenni. — Diplomarbeit ETH, 1948.
[45] Haenni, Telegdi et Zunti. — *Helv. Phys. Acta*, 1948, **21**, 203.
[46] Waeffler et Younis. — *Helv. Phys. Acta*, 1949, **22**, 614.
[47] Telegdi et Zunti. — *Helv. Phys. Acta*, 1950, **23**, 745.
[48] Chastel. — *J. Physique Rad.*, 1950, **11**, 291.
[49] Goward, Telegdi et Wilkins. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, **63**, 402.
[50] Chastel. — *J. Physique Rad.*, 1950, **11**, 55 S.
[51] Wilkins et Goward. — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, **64**, 201.
[52] Goward et Wilkins. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, **63**, 1171.
[53] Goward et Wilkins. — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, **64**, 93.
[54] Goward et Wilkins. — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, **64**, 94.
[55] Wilkins et Goward. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, **63**, 1173.
[56] Wilkins et Goward. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, **63**, 663.
[57] Goward et Wilkins. — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, **64**, 312.
[58] Goward, Titterton et Wilkins. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, **63**, 172.
[59] Titterton. — *Nature*, 1950, **165**, 721.
[60] Titterton. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, **63**, 1297.
[61] Titterton et Brinkley. — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, **64**, 212.
[62] Titterton. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, **63**, 915.
[63] Baldwin et Koch. — *Phys. Rev.*, 1945, **67**, 1.
[64] Schiff. — *Phys. Rev.*, 1946, **70**, 87.
[65] Miller. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 260.
[66] Brode et Starr. — *Phys. Rev.*, 1938, **53**, 319.
[67] Seaborg. — *Rev. Mod. Physics*, 1944, **16**, 1.
[68] Heitler. — The quantum theory of radiations, Oxford University Press, 1944, p. 170.
[69] Bosley, Graggs et Nash. — *Nature*, 1948, **161**, 1022.
[70] King. — *Nature*, 1950, **165**, 526.
[71] Becker, Hanson et Diven. — *Phys. Rev.*, 1947, **71**, 466.
[72] Mc Elhinney, Hanson et Duffield. — *Bull. Am. Phys. Soc.*, 1948, **23**, 7.
[73] Hanson, Duffield, Knight, Diven et Palevsky. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 578.
[74] Mc Elhinney, Hanson, Becker, Duffield et Diven, — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 542.
[75] Parson et Collie. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, **63**, 834
[76] Parson, Lees et Collie. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950. **63**, 915.
[77] Sherr, Halpern et Stephens. — *Phys. Rev.*, 1950. **81**, 154.
[78] Ogle, Brown et Carson. — *Phys. Rev.*, 1950, **78**, 63.
[79] Mc Elhinney et Ogle. — *Phys. Rev.*, 1950, **78**, 63.
[80] Ogle et England. — *Phys. Rev.*, 1950, **63**, 78.
[81] Perlman et Friedlander. — *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 442.
[82] Baldwin et Klaiber. — *Phys. Rev.*, 1948, **73**, 1156.
[83] Goldhaber et Teller. — *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 1046.
[84] Gaertner et Yeater. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 363.
[85] Dresser. — *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 754.
[86] Levinger et Bethe. — *Phys. Rev.*, 1950, **78**, 115.

ÉTUDE DES PHOTODÉSINTÉGRATIONS.
II. QUELQUES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX SUR LES PHOTODÉSINTÉGRATIONS ET LEURS CONFRONTATIONS AVEC DIVERSES THÉORIES

Par RAYMOND CHASTEL.
Laboratoire de Chimie Nucléaire, Collège de France.

Sommaire. — Cette étude comprend deux parties : une partie concernant les résultats sur les noyaux moyens et lourds (noyaux pour lesquels le modèle nucléaire statistique peut être utilisé), une autre partie concernant les noyaux légers ($Z < 20$). Les difficultés résultant de l'absence d'un modèle nucléaire pour les noyaux légers sont abordées.

L'étude des photodésintégrations pose un certain nombre de problèmes théoriques qui sont encore loin d'être définitivement résolus; on va rapidement examiner ici l'interprétation théorique des résultats obtenus par différents auteurs (1). Depuis l'utilisation généralisée des accélérateurs d'électrons, l'étude des photodésintégrations s'est considérablement développée au cours des dernières années. Pour donner une idée de l'extension prise par ces études, donnons un nombre approximatif des publications parues chaque année depuis la découverte de l'effet photonucléaire par Chadwick et Goldhaber [1] en 1934. (Il est nécessaire de rectifier ici l'erreur historique concernant cette découverte qui se trouve dans quelques publications [2]).

1934-39	1940-45	1946	1947	1948	1949	1950	1951
7	10	2	2	17	22	47	85 (*)

(*) Nombre certainement incomplet.

Dates importantes de l'étude des photodésintégrations. — Découverte par Chadwick et Goldhaber 1934; Travaux de Bothe et Gentner, 1937; Photofission, 1941; Utilisation du bétatron pour les photodésintégrations, 1945; Photodésintégration en plusieurs particules, 1945; Photodésintégration du carbone en 3 α, 1948; Phototripartition, 1949; Photodésintégration conduisant à un noyau stable, 1950.

A. Noyaux moyens et lourds.

1. Rapports $\frac{\sigma(\gamma, n)}{\sigma(\gamma, p)}$. — Les déterminations des sections efficaces (γ, *n*) et (γ, *p*) effectuées par Hirzel et Wäffler [3] avaient montré une divergence importante entre les rapports $\frac{\sigma(\gamma, n)}{\sigma(\gamma, p)}$ expérimentaux et théoriques (modèle statistique ou de l'évaporation), ces mesures portaient sur des éléments du milieu de la classification de Mendeleev et l'étude concernait les réactions conduisant à des nuclides radioactifs β. Ils trouvaient expérimentalement un nombre relativement plus grand de photoprotons par rapport au nombre de photoneutrons qu'il était prévu par les indications théoriques.

J'ai cherché à mettre en évidence l'effet photonucléaire avec émission de protons conduisant à un nuclide stable. Ma publication préliminaire [4] concernant l'émission des photoprotons par le cuivre, mettait en évidence ces réactions et la valeur annoncée pour la section efficace $\sigma(\gamma, p) = 10^{-27}$ cm² paraissait indiquer encore une discordance avec la prévision théorique, toutefois l'écart observé était inférieur à ceux observés, en général, par Hirzel et Wäffler. Toms, Halpern et Stephens [5], [6], utilisant un bétatron, donnaient également une première publication concernant les réactions (γ, *p*) sur les isotopes du magnésium, dont certaines conduisent à des nuclides stables. Byerly et Stephens [7], [8], utilisant également un bétatron, étudiaient les réactions photonucléaires du cuivre; ils confirment la réaction (γ, *p*) que j'avais observée et indiquent que la valeur σ(γ, *p*) de ma publication est quelque peu plus faible que la valeur déduite de leurs résultats expérimentaux. En outre, ils obtenaient un rapport des nombres $\frac{n}{p}$ en accord satisfaisant avec diverses théories du type évaporation. Récemment, plusieurs études sur les réactions (γ, *p*) ont été publiées, en particulier par Mann et Halpern [9] et Diven et Almy [10].

La section efficace Cu (γ, *p*) Ni, $\sigma \neq 6.10^{-26}$ cm² que j'ai obtenue calculée après une étude plus soignée des différentes corrections (2) est très nettement supérieure et donne un accord satisfaisant avec la théorie statistique de Weisskopf. Cette confrontation théorique confirme donc les vérifications de Byerly et Stephens.

On doit remarquer, comme le souligne Courant [14], que $^{63,65}_{29}$Cu dont *Z* impair et *N* pair conduisent à des isotopes stables pair-pair; l'énergie de liaison du proton est alors relativement faible (6 MeV). Alors que Hirzel et Wäffler étaient nécessairement

(1) Ce texte a été rédigé en liaison avec un travail expérimental de l'auteur, *cf.* R. CHASTEL, *Thèse*, Paris, 1952.

(2) *Cf.* R. CHASTEL, *Thèse*, Paris, 1952, chap. IV, § 5.

restreints par leur méthode d'activation à des noyaux conduisant à des produits radioactifs, les énergies de liaison du proton sont alors dans ces cas considérablement plus grandes, 8-9 MeV. Ainsi, dans l'émission de photoprotons conduisant à des noyaux stables, l'émission des protons est favorisée, ce qui compense au delà la difficulté de traversée de la barrière de potentiel.

Les résultats de l'équipe de Zurich ont été à l'origine de différentes tentatives d'explications théoriques de Schiff, Jensen, Courant, Levinger et Bethe, Goldhaber et Teller.

Schiff et Jensen [11], [12] cherchent à expliquer les rapports $\frac{\sigma(\gamma, n)}{\sigma(\gamma, p)}$ de Zürich par une réduction de la densité de niveau des noyaux, ce qui a pour conséquence d'accroître le pourcentage des particules de grande énergie dans le spectre émis, lesquelles traversent plus facilement la barrière de potentiel.

Courant [13], [14] met l'accent sur l'intervention de l'effet photonucléaire direct, c'est-à-dire l'action individuelle du photon sur un des nucléons du noyau. Il précise l'importance des interactions dipolaires des radiations. Sa théorie, cherchant primitivement à expliquer la valeur trop faible du rapport $\frac{n}{p}$, donne la section efficace (γ, p) sous la forme

$$\sigma = 0{,}044\left(\frac{Z}{A^{\frac{1}{3}}}\right)^2 \int_0^{x_1} P\, \mathrm{d}x,$$

où P est la transparence de la barrière de potentiel; x est l'énergie des protons émis mesurée en prenant comme unité la hauteur de la barrière de potentiel; x_1 est l'énergie maximum des protons émis.

Cette théorie accroît la section efficace (γ, p) et l'accord avec l'expérience est amélioré si l'on utilise un modèle en particules α. Et l'auteur indique que la divergence qui subsiste peut être supprimée par la conception du « chauffage local » d'une portion du noyau et évaporation de la région chauffée avant que l'excitation soit répartie dans tout le noyau.

Enfin, la théorie de Courant qu'il considère comme une première tentative grossière prévoit une distribution angulaire des protons de la forme

$$A + B \sin^2\theta,$$

θ étant l'angle entre la direction du photon et la direction d'émission du proton.

Ces diverses théories, en particulier celle de Courant, donnent des prévisions théoriques concernant le spectre énergétique et la distribution angulaire des photoparticules émises.

Les dispositifs expérimentaux de Toms et Stephens, Diven et Almy, Byerly et Stephens, Mann et Halpern permettent une étude précise des photoparticules émises.

Pour les noyaux moyens, on trouve que le spectre des photoprotons comprend deux portions : une de faible énergie, sensiblement en accord avec le modèle statistique (quant à la distribution des énergies et l'isotropie de la distribution angulaire) et une correspondant aux photoprotons de l'extrémité de grande énergie du spectre en désaccord avec le modèle statistique. Ce groupe de grande énergie présente, en outre, une asymétrie angulaire avec émission préférentielle à 90° par rapport à la direction des rayons γ, ce qui apporte un argument en faveur de l'hypothèse suivant laquelle ces protons sont émis avant que l'énergie d'excitation soit distribuée statistiquement dans l'ensemble du noyau.

En même temps, de nombreuses études des seuils de réactions [15] et de la variation des sections efficaces (γ, n) et (γ, p) en fonction de l'énergie des rayons γ, étaient publiées. Les courbes de sections efficaces présentent un maximum tout à fait inattendu.

C'est pour rendre compte plus spécialement de ces courbes « de résonance » que Goldhaber et Teller, Levinger et Bethe ont entrepris leurs études théoriques.

Goldhaber et Teller [16] considèrent les vibrations dipolaires de l'ensemble des protons par rapport à l'ensemble des neutrons du noyau.

La largeur de la résonance résulterait de l'amortissement des vibrations.

Ils obtiennent des énergies pour le maximum de la résonance en assez bon accord avec l'expérience (uranium, $\hbar\omega = 16$ MeV; Cuivre, $\hbar\omega = 20$ MeV; carbone, $\hbar\omega = 26{,}5$ MeV).

Cependant, les sections efficaces intégrées

$$\int \sigma\, \mathrm{d}\omega = \frac{\pi^2 A e^2}{2\, mc}$$

donnent un ordre de grandeur correct pour le cuivre, mais pour l'uranium et le thorium les valeurs expérimentales sont respectivement 15 et 30 fois plus petites que les valeurs théoriques.

En outre, leur théorie prévoit une émission importante de photons diffusés par résonance, d'une intensité comparable à l'effet Compton, des vérifications expérimentales difficiles de ce dernier résultat ne semblent pas montrer un effet d'un ordre de grandeur comparable à celui qui est prévu; ces dernières expériences sont analysées dans un article d'ensemble de Koklov [17].

Levinger et Bethe [18] montrent qu'aux faibles énergies d'excitation (quelques mégaélectrovolts) les transitions dipolaires ne sont que du même ordre de grandeur que les transitions quadrupolaires, la réduction de l'effet des transitions dipolaires est attribuée à des corrélations entre les mouvements des nucléons. A des énergies d'excitation plus élevées (à partir de 20 MeV environ), ces corrélations doivent disparaître.

Ils calculent, pour des transitions dipolaires, la section efficace intégrée d'absorption $\sigma(w)$ des rayons gamma d'énergie w.

$$\int \sigma(w)\, \mathrm{d}w = \frac{2\pi^2\, e^2 \hbar}{Mc}\, \frac{NZ}{A} = 0{,}06\, \frac{NZ}{A} \quad (\mathrm{MeV} \times 10^{-24}\, \mathrm{cm}^2)$$

en l'absence de forces d'échange, avec :

M, masse d'un nucléon;
N, nombre de neutrons;
Z, nombre de protons;
$A = N + Z$.

En tenant compte des forces d'échange, ils obtiennent

$$\int \sigma(w)\,\mathrm{d}w = \frac{2\pi e^2 h}{Mc}\,\frac{NZ}{A}(1 + 0,8x),$$

x, fraction des forces d'échange.

Ils donnent également une expression de l'énergie moyenne d'absorption

$$w = \frac{4}{3}\overline{T},$$

$\overline{T}$, énergie cinétique moyenne des nucléons évaluée en fonction de r_0.

Ce qui donne

$$w = 16\ \mathrm{MeV}, \qquad \text{avec} \quad r_0 = 1,5.10^{-13}\,\mathrm{cm},$$

et

$$w = 19\,\mathrm{MeV}, \qquad \text{avec} \quad r_0 = 1,37.10^{-13}\,\mathrm{cm},$$

Leur calcul de la moyenne harmonique w_{II} pour l'absorption des photons exige des hypothèses particulières sur les corrélations entre nucléons dans l'état fondamental. La valeur obtenue pour w_{II} en l'absence de toute corrélation est trop faible; par contre, en faisant intervenir des particules α dans le noyau, ils obtiennent une valeur raisonnable.

Dans le cas de ^{76}Ge, ils obtiennent

$$\int \sigma_{\mathrm{mes}}(w)\,\frac{\mathrm{d}w}{w} > 0,126.10^{-24}\ \mathrm{cm}^2;$$

la confrontation avec l'expérience est satisfaisante, pour une *transition quadrupolaire* le calcul donne $0,006.10^{-24}$ cm²; les auteurs montrent ainsi que les réactions observées sont presque entièrement d'origine dipolaire.

Dans le cas de ^{63}Cu, on a

$$\int \sigma\,\mathrm{d}w \geqq 1,5\ \mathrm{MeV} \times 10^{-24}\,\mathrm{cm}^2$$

qui doit être comparée à la valeur théorique

$$\int \sigma\,\mathrm{d}w = 0,95(1 + 0,8x)\ \mathrm{MeV} \times 10^{-24}\ \mathrm{cm}^2.$$

Ce qui leur permet, malgré le peu d'information que l'on possède sur la section efficace totale d'absorption $\sigma(w)$, de faire quelques considérations sur x.

En conclusion, on peut retenir de leur article que l'on peut grossièrement expliquer les différents phénomènes à l'aide du modèle en particules α.

Un photon γ est absorbé par un nucléon faisant partie d'une particule α. Si l'énergie est inférieure au premier niveau de $^4_2$He, on a une vibration d'ensemble des particules α et pas d'intervention des transitions dipolaires. Au-dessus de 20 MeV, le quantum peut agir sur la particule α et les transitions dipolaires deviennent prépondérantes. Enfin, pour des énergies plus grandes, quand la longueur d'onde λ du photon devient de l'ordre de grandeur des dimensions de la particule α, les transitions quadrupolaire peuvent à nouveau devenir importantes.

Cameron [19] a cherché à standardiser les courbes expérimentales $\sigma(w)$, il étudie la variation de l'énergie à la résonance E_m en fonction de A, il trouve la relation :

$$E_m = 36\,A^{+0,18}$$

en assez bon accord avec la théorie de Goldhaber et Teller qui prévoit une variation de la forme

$$E_m \sim A^{\frac{1}{6}}.$$

Toutefois, les points expérimentaux se placent mieux sur une courbe empirique qu'il donne :

$$E_m = 21\exp(0,00274\,A).$$

De plus, il suggère la possibilité de compétition des réactions (γ, 2 n) et (γ, pn) pour diminuer les rendements en photoparticules aux grandes énergies; cet argument est également émis par Haslam et Skarsgard [20], ces derniers notent toutefois que les courbes $\sigma(w)$ (γ, n) ont la même forme; il en résulterait qu'une explication par les réactions en compétition ne semble pas satisfaisante, il leur semble que l'on doive songer à d'autres explications.

Se basant sur leurs résultats expérimentaux concernant la réaction ^{32}S (γ, d) ^{30}P et les résultats d'autres auteurs, Katz et Penfold [21] calculent la section efficace intégrée d'absorption des photons par ^{32}S, ils trouvent 66.10^{-3} (MeV $\times 10^{-24}$ cm²), alors que l'expression donnée par Levinger et Bethe fournit la valeur minima 480.10^{-3} (MeV $\times 10^{-24}$ cm²).

Ils concluent que la forme de la courbe de section efficace (en forme de courbe de résonance) n'est pas expliquée par des réactions en compétition, elle devra l'être par une théorie de résonance de l'absorption γ, mais différente des théories actuelles.

2. **Réactions** (γ, d) **et** (γ, α). — Byerly et Stephens [7], [8] ont observé les réactions (γ, d) et (γ, α) sur le cuivre et la réaction (γ, α) a été confirmée sur le cuivre [22] et sur ^{87}Rb [20] par mesure de l'activité du noyau résiduel.

Le rendement en photodeutons par rapport au rendement en photoprotons est trouvé égal à 0,31 par Byerly et Stephens avec un bétatron de 24 MeV; il est certainement beaucoup plus faible avec les rayons γ de la cible de lithium, ce qui explique que je n'ai pas observé la réaction (γ, d) avec mon dispositif expérimental. Bien que le spectre de photodeutons soit en accord avec le modèle de Weisskopf-Ewing [23], ce rendement ainsi que celui $\frac{\alpha}{p} = 0,03$ étant grandement supérieurs aux rendements calculés avec divers modèles (Schiff, Courant, Le Couteur); Byerly et Stephens sont conduits à faire appel à de nouveaux processus en particulier, la capture en vol de nucléons à travers le nuclide subissant la photodésintégration (processus d'accrochage ou « pick up process) [24], ou à supposer une grande erreur pour l'énergie de laison calculée pour les deutons d'après des formules semi-empiriques.

Une réaction ^{32}S (γ, d) ^{30}P a été également observée par Katz et Penfold [21]. Ils proposent le mécanisme suivant pour expliquer la grande probabilité d'émission des photodeutons.

Près du seuil, le processus (γ, d) peut être interprété comme étant un effet inverse du processus Oppen-

heimer Phillips. L'énergie du photon est supposée principalement absorbée par le proton d'un « deuton » dans un noyau. Le proton ainsi excité peut traverser la barrière de potentiel relativement plus facilement et plus radialement. Une redistribution de l'énergie peut alors avoir lieu au cours de laquelle le neutron resté à l'intérieur du noyau peut lui-même s'échapper. Le deuton sortirait ainsi en deux étapes et le produit des probabilités séparées de chaque étape pourrait être beaucoup plus grand que la probabilité de pénétration de la barrière de potentiel par le deuton considéré comme un tout.

Haslam, Cameron, Cooke, Crosby [25] ont étudié les particules α résultant de la photodésintégration de l'argent et du brome des émulsions photographiques; leurs premiers résultats de ce travail très long et difficile montrent également un rendement anormalement élevé en photoparticules α par rapport aux prévisions de la théorie statistique. Ils donnent de ce phénomène l'explication théorique suivante : un noyau composé excité peut se désintégrer initialement par émission de photons ou de divers types de particules. De tels modes de désintégration sont dits être en compétition « parallèle ». Le noyau résiduel est généralement laissé dans un état excité. Alors a lieu une compétition « en cascade » entre l'émission de photons ou d'autres particules par ce noyau. Dans le cas particulier où ce noyau est laissé dans un état d'excitation suffisant pour émettre des particules chargées, mais pas de neutrons (en raison des différences des énergies de liaison), l'émission de ces particules chargées est dite « en cascade favorisée par les seuils ». Elle est en compétition avec l'émission γ [26].

Comme argument en faveur de ces mécanismes ils donnent le fait qu'une grande largeur de niveau pour l'émission de radiations, correspondant probablement à une émission dipolaire électrique, a récemment été observée [27] dans la désexcitation photonucléaire de l'or pour des énergies des photons incidents de 15 MeV.

On aurait donc pour ces énergies d'excitation des réactions en cascade des types suivants : $(\gamma, \gamma' n)$, $(\gamma, \gamma' p)$, $(\gamma, \gamma' \alpha)$ les γ' étant de faible énergie et étant émis avant la 2[e] particule (n, p ou α). Ainsi les particules α de faible énergie qu'ils ont observées peuvent être supposées émises principalement lors de réactions « en cascade favorisée par leur seuil » des types suivants : $(\gamma, \gamma' \alpha)$, $(\gamma, n\alpha)$, $(\gamma, p\alpha)$ et $(\gamma, \alpha\alpha)$. En accord avec ce point de vue, ils ont observé dans leurs émulsions quelques phénomènes d'émissions $(\gamma, p\alpha)$, où l'on voit un proton et une particule α issus d'un point commun; ils ont également observé des fourches $(\gamma, \alpha\alpha)$.

B. Noyaux légers.

L'interprétation des particularités des réactions photonucléaires produites sur des noyaux légers, présente des difficultés encore plus grandes que pour les noyaux moyens et lourds. En raison de l'impossibilité d'application de la théorie statistique des noyaux, résultant du grand espacement des niveaux et du nombre faible de nucléons, on ne peut plus appliquer les lois statistiques pour la répartition de l'énergie d'excitation entre les différents nucléons.

Toms, Halpern et Stephens [28] et Toms et Stephens [29] ont étudié les photoprotons du magnésium et Diven et Almy [10], les photoprotons de l'aluminium; ils utilisaient les uns et les autres un bétatron et la technique des émulsions nucléaires. Ils comparent les spectres énergétiques obtenus avec les spectres calculés suivant le modèle d'évaporation en utilisant diverses densités de niveaux, en soulignant toutefois les difficultés d'application de ce modèle. Toms et Stephens, en particulier, utilisant les niveaux connus de ^{24}Na, obtiennent un accord satisfaisant avec la théorie et dans un cas comme dans l'autre, l'uniformité de la distribution angulaire des protons confirme encore cet accord.

Ainsi, contrairement à ce que l'on aurait pu penser, la théorie de l'évaporation dont la validité d'application est contestable pour les noyaux légers, semble assez bien vérifiée; au contraire, des difficultés nombreuses se présentent comme on vient de le voir pour les noyaux moyens et lourds où elle semblait être dans son domaine de pleine validité. Toms et Stephens expliquent ce fait en supposant un accroissement du libre parcours dans le noyau pour le proton en raison des plus grandes énergies dont il dispose (en effet, les énergies de liaison des protons sont ici beaucoup plus faibles). Pour les noyaux plus lourds encore, la barrière de potentiel vient encore restreindre le nombre des photoprotons de faible énergie résultant du processus d'évaporation, ce qui accroît en conséquence l'importance des photoprotons de grande énergie résultant en partie de l'effet photonucléaire direct.

Hirzel et Wäffler [3] ayant étudié les sections efficaces (γ, n) et (γ, p) pour le magnésium, l'aluminium et le silicium trouvent des sections efficaces du même ordre de grandeur pour l'effet (γ, p) et l'effet (γ, n); ce résultat leur paraît inattendu. Diven et Almy ont montré que ce résultat s'explique en admettant une densité constante des niveaux et en tenant compte de la différence d'énergie de liaison d'un neutron et d'un proton, ce qui compense largement l'effet de la barrière de potentiel pour le proton.

Une particularité ayant rapidement attiré l'attention se présente pour la photodésintégration des noyaux ayant des nombres atomiques Z allant jusqu'à 20 : les sections efficaces (γ, n) ont des fluctuations importantes dépassant, semble-t-il, les erreurs expérimentales. Autrement dit, la courbe des sections efficaces (pour un rayonnement γ déterminé) des différents éléments en fonction de Z n'est pas une courbe continue, elle présente des minima qui paraissent se renouveler avec une certaine périodicité. Jensen [30] avait fait un rapprochement entre l'existence de ces minima et les fluctuations de ce qu'il appelle le « nombre isotopique » $N - Z$ qui représente l'excès de neutrons par rapport au nombre de protons.

J'avais moi-même attiré l'attention [31] sur le fait que ces minima des valeurs de la section efficace (γ, n) avaient lieu pour des nuclides correspondant à un nombre entier de particules α de la forme $^{4k}_{2k}$X (k = nombre entier; X représentant un symbole chimique arbitraire). D'autre part, la section efficace $\sigma(\gamma, n)$ présente une augmentation importante au-dessus de $Z = 20$; or, au delà de $Z = 20$, on ne

rencontre pas de nuclides stables du type ${}^{4k}_{2k}X$, ceci en raison de l'influence des forces électrostatiques entre protons. Plus tard, Vendryès [32] a également noté le comportement particulier des nuclides « saturés » du type ${}^{4k}_{2k}X$.

Ces variations de la section efficace (γ, n) peuvent

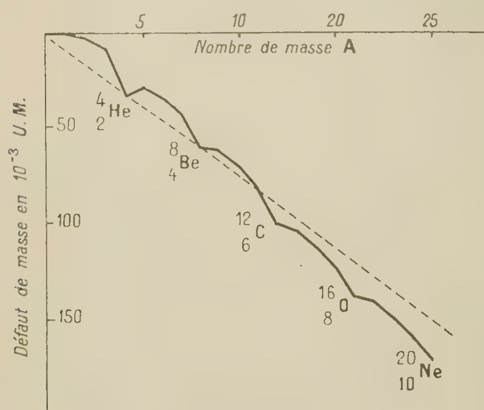


Fig. 1.

s'expliquer grossièrement de la façon suivante : la courbe des défauts de masse (*fig.* 1) [33] présente des maxima en valeur absolue à chaque fois que l'on passe par un noyau du type ${}^{4k}_{2k}X$, ces fluctuations diminuent d'intensité dans la zone $A = 20$, $A = 40$, les seuils des réactions (γ, n) passent par des maxima pour les nuclides correspondants, donc pour une énergie de rayonnement γ déterminée (ici les rayonnement de 17,6 et 14,8 MeV de la cible du lithium), on se trouve pour ces nuclides plus près du seuil. Or, si la courbe de section efficace est uniformément croissante en fonction de l'énergie d'excitation, les variations d'énergie de liaison expliquent les minima des sections efficaces mesurées avec ce rayonnement.

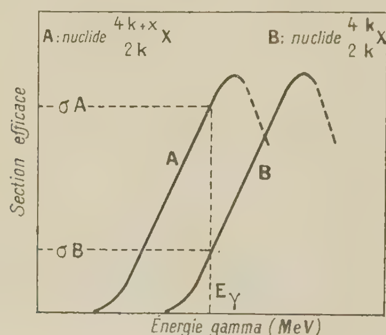


Fig. 2.

En réalité, les sections efficaces ne sont pas uniformément croissantes, elles présentent une « forme de courbe de résonance », mais les énergies des maxima de ces courbes sont toutes situées au-dessus de 17,6 MeV et ces courbes présentent une grande analogie de forme. Pour les rayons γ de la cible de lithium, il n'y a donc pas lieu de tenir compte de la partie décroissante des courbes $\sigma(h\nu)$ située au-dessus du maximum. Cette allure des variations de $\sigma(\gamma, n)$ reliée empiriquement à la constitution des nuclides du type ${}^{4k}_{2k}X$ se trouve donc expliquée par les variations d'énergies de liaison (*fig.* 2).

Mécanisme des réactions photonucléaires sur les nuclides légers. — Actuellement, il subsiste encore des difficultés d'interprétation expérimentale du mécanisme des réactions photonucléaires sur les éléments légers.

Il semble parfaitement établi que pour les photodésintégrations ${}^{12}_{6}C(\gamma, 3\alpha)$ et ${}^{16}_{8}O(\gamma, 4\alpha)$, on ait passage avec une faible probabilité par le nuclide ${}^{8}_{4}Be$ à l'état fondamental, ce qui détermine dans les émulsions des fourches de particules α en forme de V, les deux branches du V étant très rapprochées.

Mais, par contre, le passage par ${}^{8}_{4}Be$ à des états excités de 3, 4, 5 et 8 MeV semble beaucoup moins certain.

J'ai montré que pour la réaction ${}^{12}_{6}C(\gamma, 3\alpha)$ produite par la raie de 17,6 MeV de la cible de lithium, l'hypothèse du passage par ${}^{8}_{4}Be$ à l'état excité conduisait à admettre indifféremment pour chaque étoile un niveau de 3, 5 et 8 MeV, ce qui m'a conduit à envisager l'hypothèse de la phototripartition du nuclide excité ${}^{12}_{6}C$.

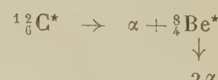
Par contre, une étude théorique [34] utilisant un modèle en particules α semble montrer que la tripartition aurait une probabilité notable seulement aux grandes énergies. Or, une étude expérimentale de Wilkins et Goward [35] récente, faite avec le rayonnement de freinage de 70 MeV, semble indiquer l'intervention de ${}^{8}_{4}Be$, à un niveau de $(16,9 \pm 0,3)$ MeV; cette même étude montre encore le passage avec faible probabilité par ${}^{8}_{4}Be$ à l'état fondamental, d'autres étoiles semblent montrer des passages par d'autres niveaux excités.

De toute façon, l'hypothèse de réactions à trois particules dans la photodésintégration des éléments légers semble avoir été éliminée sans arguments expérimentaux suffisants. En outre, des difficultés d'interprétation se présentent concernant la désintégration ${}^{8}_{4}Be \rightarrow 2\alpha$ pour le niveau de 3 MeV, ainsi que pour d'autres réactions nucléaires, en particulier [36], [37].



$${}^{8}_{3}Li(\ ,\beta)2\alpha, \quad {}^{11}_{5}B(p, \alpha)2\alpha \quad \text{et} \quad {}^{9}_{4}Be(\alpha, n)3\alpha.$$

On peut conclure en disant que d'autres études expérimentales et théoriques sont nécessaires pour éclaircir définitivement le mécanisme d'un certain nombre de réactions nucléaires pouvant éventuellement faire intervenir un processus :



$${}^{12}_{6}C^{*} \rightarrow \alpha + {}^{8}_{4}Be^{*} \quad (\downarrow 2\alpha)$$

ou un processus de tripartition



$${}^{12}_{6}C^{*} \rightarrow 3\alpha.$$

La grande difficulté des études théoriques concernant ces noyaux légers réside dans le fait que l'on ne dispose pas d'un modèle nucléaire pleinement valable pour les noyaux légers. Un modèle en particules α moins

grossier que celui qui a été utilisé jusqu'ici correspondant à attribuer aux noyaux en particules α une structure du type moléculaire est peut-être susceptible de donner des résultats dans lesquels on pourrait avoir une plus grande confiance.

Notons toutefois que l'hypothèse de la tripartition de $^{12}_{6}C$ si elle se trouve confirmée pourrait être comprise par un mécanisme du type « chauffage local » proposé par Courant [14]. Le noyau comportant ici peu de particules, on pourrait comprendre une certaine répartition sensiblement égale de l'énergie d'excitation entre les trois particules α émises. A de plus grandes énergies, l'effet photonucléaire direct pourrait alors tendre à donner une plus grande énergie à une seule des particules α, ce phénomène prenant une importance croissante, expliquerait peut-être la croissance anormale de la section efficace $^{12}_{6}C(\gamma, 3\alpha)$ après le maximum situé vers 18 MeV.

Manuscrit reçu le 23 septembre 1952.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Chadwick, Goldhaber. — *Nature*, 1934, **134**, 237.
[2] Lataste. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 39.
[3] Hirzel et Wäffler. — *Helv. Phys. Acta*, 1947, **20**, 373. (*Voir* bibliographie plus complète, article I)
[4] Chastel. — *C. R. Acad. Sc.*, 1950, **230**, 2020.
[5] Toms, Halpern et Stephens. — *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1949, **7**, 22.
[6] Toms et Stephens. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 709.
[7] Byerly et Stephens. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 473.
[8] Byerly et Stephens. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 54.
[9] Mann et Halpern. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 733.
[10] Diven et Almy. — *Phys. Rev.*, 1950, **80**, 407.
[11] Schiff. — *Phys. Rev.*, 1948, **73**, 1311.
[12] Jensen. — *Nat. Wiss*, 1948, **35**, 190.
[13] Courant. — *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1948, **23**, 30.
[14] Courant. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 703.
[15] Sherr, Halpern et Mann. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 387.
[16] Goldhaber et Teller. — *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 1046.
[17] Koklov. — *Ousp. Phys. Naouk*, 1950, **42**, 316.
[18] Levinger et Bethe. — *Phys. Rev.*, 1950, **78**, 115.
[19] Cameron. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 272.
[20] Haslam et Skatsgard. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 479.
[21] Katz et Penfold. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 815.
[22] Haslam, Smith et Taylor. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 840.
[23] Weisskopf et Ewing. — *Phys. Rev.*, 1940, **57**, 472.
[24] Chew et Goldhaber. — *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 470.
[25] Haslam, Cameron, Cooke et Crosby. — Communication privée, à paraître.
[26] Le Couteur. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, *A* **63**, 259.
[27] Cameron et Katz. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 608.
[28] Toms, Halpern et Stephens. — *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 753.
[29] Toms et Stephens. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 709.
[30] Jensen. — *Proc. Phys. Soc.*, 1948, **61**, 579.
[31] Chastel. — *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **228**, 1803.
[32] Vendryes. — *Thèse*, Paris, 1951..
[33] Berthelot. — Cours Physique nucléaire, Sorbonne, Paris.
[34] Telegdi et Verde. — *Helv. Phys. Acta*, 1949, **22**, 380.
[35] Wilkins et Goward. — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, **64**, 1056.
[36] Li et Ward Whaling. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 661.
[37] Chastel. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **234**, 522.

LETTRES A LA RÉDACTION

H. A. KRAMERS (1895-1952).

Par E. BAUER.

Hendrik Anthony Kramers est mort au mois de mai dernier. Nous l'avons appris ici peu de temps avant l'ouverture d'un colloque sur les « changements de phase » organisé sous les auspices de l'Union Internationale de Physique dont il était président. Il s'était réjoui de l'inaugurer et il avait promis d'y faire une communication personnelle, car c'était un sujet auquel il avait beaucoup réfléchi.

Cette mort en pleine maturité est une grande perte pour la Physique. Kramers était un physicien complet, bien plus, un des hommes les plus complets que l'on pût rencontrer. Lorsque l'on discutait avec lui, ses remarques précises, claires et profondes montraient aussitôt qu'il avait saisi l'essentiel du problème. Bientôt, le contact personnel s'établissait et l'on devenait son ami.

Il était depuis près de vingt ans professeur de Physique théorique à l'Université de Leyde où il continuait la brillante tradition de H. A. Lorentz et de Paul Ehrenfest. C'est à Leyde aussi qu'à l'âge de 20 ans il s'était initié à la Physique théorique sous la direction d'Ehrenfest, dont il devait reprendre plus tard le séminaire si vivant. Un an après il allait à Copenhague. Il y travailla d'abord librement auprès de Niels Bohr dont il devint bientôt l'assistant, puis le maître de conférences. C'est là qu'il fit ses premières recherches sur la théorie des quanta : intensité des raies spectrales, effet Stark, etc.

Son premier travail d'importance fondamentale fut sur la théorie quantique de la dispersion de la lumière. A cette époque (1924), bien que L. de Broglie eût déjà publié ses notes sur la mécanique ondulatoire, le seul principe qui pouvait servir de guide pour établir une théorie quantique de phénomènes aussi complexes que ceux de la dispersion, était le Principe de Correspondance de Bohr, principe semi-qualitatif, sorte de bâton de magicien dont l'usage faisait appel à l'intuition du physicien autant et plus peut-être qu'à sa puissance de calcul.

Ces deux qualités, Kramers les possédait pleinement. Les formules qu'il établit sont encore valables aujourd'hui et sa théorie, après son développement dans des recherches ultérieures faites en collaboration avec Heisenberg (1925), peut être considérée comme l'origine de la « Mécanique Quantique »de Heisenberg, Born et Jordan qui, sans faire appel à l'imagination, par voie purement phénoménologique, aboutit aux mêmes conclusions que la mécanique ondulatoire, dont elle n'est, comme on le vit bientôt, qu'une forme plus abstraite.

Nous pouvons rappeler encore qu'en 1926, à peu près en même temps que Léon Brillouin et Wentzel, Kramers développa une élégante méthode d'approximation permettant de faire le lien entre l'ancienne mécanique quantique et la nouvelle, et de résoudre certains problèmes concrets, trop difficiles pour être traités rigoureusement.

Rentré aux Pays-Bas, il s'intéressa aux travaux expérimentaux qui se faisaient dans ce pays et notamment à ceux du laboratoire Kammerling-Onnes à Leyde. C'est ainsi qu'il fut conduit à tout un ensemble de recherches sur le para- et le ferromagnétisme, sur les points de Curie et, plus généralement sur les transitions de phase. C'est en 1941 que parut — en collaboration avec Wannier — son grand mémoire « sur la statistique d'un ferromagnétique à deux dimensions », tentative couronnée de succès au moins partiel pour comprendre le mécanisme des transitions de phase « de seconde espèce ». Rappelons encore qu'en 1929, 1930 et 1951 il publia en collaboration avec Jean Becquerel des travaux théoriques sur la polarisation rotatoire paramagnégnétique.

Ses recherches sur les ferro-magnétiques n'étaient pas les premières où intervenait la mécanique statistique. Dès 1923, à Copenhague, il s'était intéressé à des problèmes de cinétique. Plus tard, il travailla sur « le mouvement brownien dans un champ de force et le modèle de diffusion des réactions chimiques », puis sur « le comportement des macromolécules dans un fluide en mouvement ».

Enfin, en 1950, à propos d'un Conseil de Physique Solvay, il développa des idées originales sur l'électrodynamique quantique et le principe de correspondance.

Ce qui précède ne peut donner qu'une idée imparfaite de l'effort immense que fournit H. A. Kramers au cours de sa carrière, de l'aisance souveraine avec laquelle il abordait les problèmes les plus variés et les plus difficiles, de l'influence qu'il a exercée, et des amitiés qu'il a suscitées dans le monde entier.

E. BAUER.

ABSORPTION INFRAROUGE DE N_2 ET O_2 INDUITE PAR LES FORCES INTERMOLÉCULAIRES

Par MM. R. Coulon, B. Oksengorn, St. Robin et B. Vodar,

Laboratoire des Hautes Pressions (Bellevue).

Des bandes de rotation-vibration correspondant à des transitions normalement interdites ont été récemment observées dans l'infrarouge avec H_2, N_2, O_2 et CO_2 comprimés. Dans le cas de O_2 et N_2, les bandes fondamentales sont situées respectivement aux environs de 1556 et 2331 cm^{-1} [1]. Ces bandes fondamentales n'ont pas été étudiées jusqu'ici à des pressions élevées probablement à cause des difficultés dues à la faible résistance mécanique des fenêtres transparentes dans cette région spectrale.

Un appareillage déjà décrit [2] a pu être adapté sur le spectromètre Perkin-Elmer. La bombe quelque peu modifiée pour augmenter l'ouverture utile du faisceau lumineux était munie de fenêtres de fluorine de 7 mm d'épaisseur posées (avec contact optique) sur des embases en acier portant une ouverture de 7,5 mm de diamètre contre la fenêtre. Ces fenêtres peuvent résister à des pressions répétées de 900 atm, mais ont cependant une durée de vie limitée qui peut être considérablement augmentée en réduisant l'ouverture utile de l'embase. L'épaisseur de la couche absorbante était de 20 mm environ. L'azote utilisé renfermait seulement 0,0004 pour 100 d'O_2 et l'oxygène 27 mg d'eau au mètre cube (cette quantité est d'un ordre de grandeur suffisamment faible pour ne pas gêner les mesures [3]).

La figure 1 représente le profil de la bande 2 331 cm^{-1} de N_2 obtenu en protant le rapport $\frac{\varepsilon}{d^2}$ du coefficient d'absorption au carré de la densité en amagats (1) en fonction du nombre d'ondes. Ce profil reste le même sur tout l'intervalle de nos mesures (de 200 à 900 kg/cm^2.) Le coefficient d'absorption intégré est de $1{,}2 . 10^{-4}$ cm^{-1} par amagat^2, valeur très voisine de celle trouvée à basse pression [1]. La courbe 1 (*fig.* 2) montre que la proportionnalité de ε_{max} à d^2 se conserve très bien aux fortes densités.

Avec O_2, cette proportionnalité n'est plus vérifiée comme le montre la courbe 2 (*fig.* 2); ε_{max} croît moins vite que d^2 (la courbe 3 (*fig.* 2) est l'extrapolation de la droite observée jusqu'à 50 atm [5]). Un tel effet ne peut pas être attribué à une impureté. Comme il ne se produit pas avec N_2 ni H_2 [1] à des pressions égales, il est peut-être possible de le relier à la formation de molécules O_4 au sein du gaz comprimé (2). La présence de molécules O_4 en nombre croissant avec la pression pourrait en effet provoquer des perturbations importantes du phénomène de production de ces bandes infrarouges que l'on peut attribuer à des distorsions moléculaires induites durant les chocs binaires [6]. On peut penser d'autre part à la diminution du nombre relatif de molécules O_2, mais l'effet observé est si important que cette explication est peu probable [comparer les courbes 3 et 2 (*fig.* 2)]. Des mesures en fonction de la température permettront de préciser le mécanisme qui est en jeu.

(1) Les densités ont été déduites des travaux de H. M. Wouters (Thèse Amsterdam, 1941) pour N_2 et de E. H. Amagat (*Ann. Chim. Phys.*, 1893, **29**, 68) pour O_2.

(2) Le nombre de molécules O_2 polymérisées en O_4 pourrait atteindre l'ordre de grandeur de 25 pour 100 du nombre total pour des pressions voisines de 1000 atm [4].

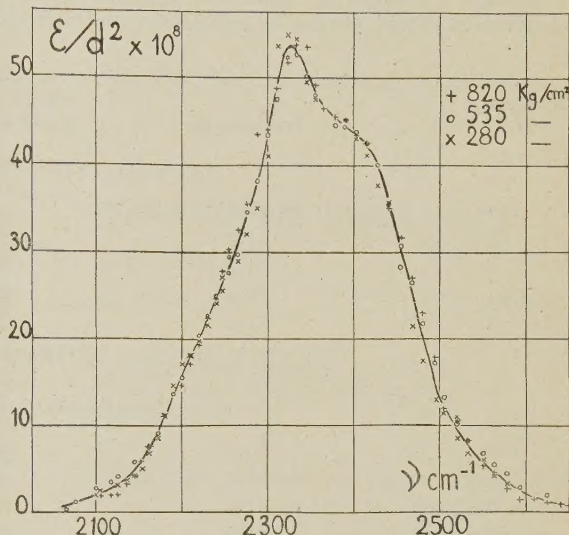


Fig. 1.

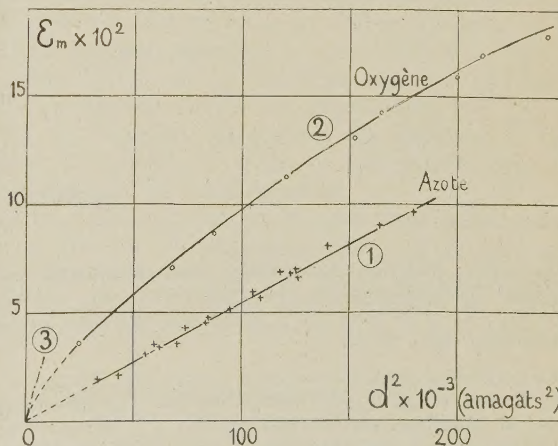


Fig. 2.

[1] Welsh H. L., Crawford M. C., Mac Donald J. C. F. et Chisholm D. A. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 1264.

[2] Robin S. — *Thèse*, Paris, 1951; *J. Chim. Phys.*, 1952, **49**, 1.

[3] Hettner G. — *Ann. Physik*, 1918, **55**, 476.

[4] Herman L. — *Thèse*, Paris, 1939; *Ann. Physique*, 1939, **11**, 548.

[5] Crawford M. F., Welsh H. L. et Locke J. L. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 1607.

[6] Van Kranendonk J. et Bird R. B. — *Physica*, 1951, **17**, 953.

Manuscrit reçu le 1er décembre 1952.

CONSTANTES DIÉLECTRIQUES D'ISOMORPHES DE PHOSPHATE ET ARSÉNIATE D'AMMONIUM

Par Claude Delain.

Centre d'Études cristallographiques,
Faculté des Sciences de Nancy.

L'auteur a mesuré en basse fréquence (1000 c/s) et à diverses températures les constantes diélectriques d'isomorphes de phosphates et d'arséniates monoammoniques.

Les résultats obtenus sont dans les tableaux ci-dessous.

Ces tableaux montrent que les constantes diélectriques ne varient pas linéairement en fonction de la concentration en arséniate.

Une étude plus complète est en cours afin de donner une interprétation moléculaire du phénomène précédent.

Température (°C).	PO_4H_2Am pur.	Isomorphes. 11 moles AsO_4H_2Am, 89 moles PO_4H_2Am.	21,4 moles AsO_4H_2Am, 78,6 moles PO_4H_2Am.	AsO_4H_2Am pur.
Lames perpendiculaires à l'axe quaternaire.				
100	13,95	13,1	–	–
50	14,8	13,8	–	–
0	16,3	15,1	15,6	15,0
— 50	18,1	17,2	17,4	15,9
—100	21,3	20,0	19,6	
	Rupture à —128°C	Rupture à —128°C	Rupture à —120°C	Rupture à —67°C
Lames parallèles à l'axe quaternaire.				
100	50,0	46,0	49,5	60,7
50	55,2	48,9	53,5	68,2
0	61,9	54,0	59,1	81,5
— 50	71,5	62,5	69,6	103,6
—100	87,3	76,2	90,5	–
	Rupture à —128°C.	Rupture à —128°C	Rupture à —120°C.	Rupture à —67°C

Manuscrit reçu le 7 décembre 1952.

REVUE DES LIVRES

Lang (R.), **Further laboratory and workshop note** (Notes complémeniaires de laboratoire et d'atelier). (1 vol. 14 × 22 cm, XII + 290 pages, Edward Arnold, Londres, 1951, 28 s).

Ce livre est le second de ce type : notes déjà publiées dans *The Review of scientific Instruments* que l'on sélectionne, classe et réunit en un ouvrage.

Comme dans le premier tome de cette collection, les notes ont été légèrement condensées, les paragraphes d'introduction ont été omis.

Les notes sont réparties en sept sections :

1. Dessins et graphiques;
2. Techniques et dispositifs d'optique;
3. Dispositifs pour liquides et gaz;
4. Chaleur, thermométrie et fours;
5. Outils de laboratoire et d'atelier. Procédés et qlans.
6. Techniques et dispositifs relatifs au vide et à la pression;
7. Montages électriques, techniques et équipements annexes.

Un index alphabétique complète la table des matières et rend l'usage de l'ouvrage très commode : tous les dispositifs, idées, « trucs » décrits dans la *Revue of Scientific Instruments* sont rassemblés et facilement utilisables.

M. Badoz.

Rochester (G. D.) et Wilson (J. G.), **Photographies des radiations cosmiques dans une chambre à détente** (1 vol. 20 × 27 cm, VIII + 128 pages, Pergamon Press, Londres, 1952).

Dans ce remarquable album, on trouve de nombreuses photographies qui ont été soigneusement sélectionnées parmi les plus représentatives et les plus instructives des collections mondiales dans ce domaine de la Physique. Il faut louer la présentation impeccable et le texte qui accompagne chacune des vues. Le livre est divisé en cinq parties relatives à la technique des opérations, aux électrons et aux gerbes, aux mésons μ, aux désintégrations nucléaires et à l'interaction de particules secondaires, aux particules V.

Dupuy.

Le Gérant : Maurice Blondin. 143 148 Imp. Gauthier-Villars, 55, quai des Grands-Augustins, Paris. — 1953.